

리튬이온 이차전지용 NCM622 및 LMFP64로 구성된 혼합양극의 전기화학적 특성

고난영 · 류지현*

한국공학대학교 융합기술에너지대학원

(2025년 2월 4일 접수 : 2025년 2월 6일 수정 : 2025년 2월 6일 채택)

Electrochemical Characteristics of Blended Positive Electrodes Composed of NCM622 and LMFP64 for Lithium-Ion Batteries

Nan Young Go and Ji Heon Ryu*

Graduate School of Convergence Technology and Energy, Tech University of Korea,
237 Sangdaehak-ro, Siheung-si, Gyeonggi-do, 15073, Korea

(Received February 4, 2025 : Revised February 6, 2024 : Accepted February 6, 2025)

초 록

리튬이온 이차전지는 높은 에너지 밀도로 인해 전자기기와 전기자동차 등 다양한 분야에서 필수적인 역할을 하고 있다. 그동안 고에너지 밀도 구현을 위하여 $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.2}\text{O}_2$ (NCM622)와 같은 층상구조 물질들이 주로 양극 활물질로 사용되어 왔다. 그러나, 최근에는 비용 효율성과 안전성을 강화해야 한다는 요구가 증가하면서, 철(Fe)과 망간(Mn)을 사용하는 $\text{LiMn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{PO}_4$ (LMFP64)와 같은 인산화물계 활물질의 활용에 대한 관심이 높아지고 있다. 본 연구에서는 NCM622과 LMFP64를 사용하여 다양한 혼합비율로 전극을 제조하고 전기화학적 특성을 평가하였다. 상호보완적 특성의 두 활물질의 경우 NCM622에 소량의 LMFP64를 혼합할 때 가장 높은 밀도를 가졌으나, 전기화학적 성질은 두 활물질의 고유한 특성이 혼합비율에 따라 선형적으로 발현되었다. NCM622을 단독으로 사용할 때 용량과 속도특성이 모두 가장 우수했으며, LMFP64의 혼합비율이 증가함에 따라 성능은 선형적으로 감소하였다. 따라서 NCM622과 LMFP64의 혼합비율을 조정함으로써 전지에서 요구되는 물성을 만족하는 최적의 전극설계를 구성할 수 있을 것이다.

Abstract : Lithium-ion batteries (LIBs) play a crucial role in various fields, including electronic devices and electric vehicles, due to their high energy density. Ni-based layered materials such as $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.2}\text{O}_2$ (NCM622) have been predominantly used as positive electrodes to achieve high energy density. However, there is a growing demand to enhance cost efficiency and safety. As a result, interest in phosphate-based active materials, such as $\text{LiMn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{PO}_4$ (LMFP64), which use Fe and Mn, has been increasing. In this study, the electrodes with various blending ratios of NCM622 and LMFP64 were fabricated, and their physical and electrochemical properties were evaluated. For these two complementary positive electrode materials, the maximum density was achieved when a small amount of LMFP64 was blended with NCM622. However, the electrochemical properties were found to vary linearly with the blending ratio, reflecting the inherent characteristics of the two active materials. Electrochemical analysis showed that electrodes using NCM622 alone exhibited the best capacity and rate capability. As the blending ratio of LMFP64 increased, these electrochemical performance metrics

*E-mail: ryujh@tukorea.ac.kr

decreased linearly. Therefore, by adopting blended electrodes composed of NCM622 and LMFP64, it is expected that optimized electrodes with desired properties can be developed.

Keywords : Lithium-ion batteries, Positive electrode, Blended electrode

1. 서 론

최근 리튬이온 이차전지(Lithium-ion batteries, LIBs)는 전자기기 및 전기 자동차를 포함하는 다양한 산업분야에서 필수적인 기능을 담당하고 있다. LIB의 높은 에너지 밀도를 제공하는 장점으로 인해 지속적인 성장을 거듭하고 있으나, 최근에는 비용 효율성과 안전성을 더욱 강화해야 한다는 요구가 증가하고 있는 상황이다.^{1,2)}

이러한 리튬이온 이차전지에서 양극 활물질은 전지의 용량과 성능을 결정하는 데 중요한 역할을 한다.³⁾ 그래서 LiCoO_2 (LCO) 및 $\text{LiNi}_x\text{Co}_y\text{Mn}_z\text{O}_2$ (NCM) 등의 층상구조 산화물(layered oxide)을 중심으로 양극 활물질이 적용되어 왔다. 최근에는 LiFePO_4 (LFP) 및 $\text{LiMn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{PO}_4$ (LMFP) 등의 활물질이 높은 안전성과 저비용이라는 장점을 유지하면서도 안정된 성능을 제공하는 대체 양극재로 주목받고 있다. LFP의 장점인 높은 안정성과 저비용이라는 장점을 유지하면서도, LFP에서 철(Fe)의 일부를 망간(Mn)으로 대체하여 작동 전압을 약 0.6 V 높여 에너지 밀도를 개선할 수 있는 LMFP가 주목받고 있다. 그러나, LMFP는 LFP와 마찬가지로 1차원 확산 구조로 인해 전자전도도와 리튬 확산계수가 낮아, 이를 보완하기 위해 일반적으로 탄소 코팅된 나노 크기 입자로 제조되어 사용된다.⁴⁻⁶⁾

NCM계 양극 활물질은 용량을 증가시키기 위하여 Ni의 함량을 점차로 높여가고 있으나, 증가하는 비용과 열적 불안정성 및 안전성에 대한 문제가 제기되고 있다.^{7,8)} 따라서, 기존의 NCM계 양극 활물질과 LMFP 활물질의 혼합양극의 구성을 통하여 높은 에너지 밀도를 유지하면서도 안전성과 가격문제를 해소하기 위한 방안을 모색하고 있다.⁹⁻¹⁴⁾ 이러한 두 양극 활물질은 반응전압 구간이 유사하기 때문에 혼합하여 사용하기에 적합하며, 각각의 성질의 확연한 특성차이가 있어서 적절한 전극조성의 구현을 통하여 장점을 최적화하는 구성이 가능할 것으로 기대되어 여러 연구가 진행되고 있다. 본 연구에서는 구조의 $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.2}\text{O}_2$ (NCM622)와 올리빈 구조의 $\text{LiMn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{PO}_4$ (LMFP64)의 조성을 다르게 한 혼합전극을 제조하고 그 전기화학적 특성을 비교하여 그 활용 가능성을 높이 고자 한다.

2. 실 험

양극 활물질로는 층상 구조의 $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.2}\text{O}_2$ (NCM622, Umicore)와 올리빈 구조의 $\text{LiMn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{PO}_4$ (LMFP64, Shandong Yunji Energy Technology)를 각각 사용하였다. NCM622와 LMFP64의 평균 입도는 각각 11.4 μm 와 0.99 μm 로 큰 차이를 보이며 LMFP64의 경우 탄소가 코팅되어 제조되었다. 두 양극 활물질을 단독으로 또는 다양한 비율로 혼합하여 전극을 제조하였다. NCM622와 LMFP64의 혼합 비율은 각각 100:0, 75:25, 50:50, 25:75, 0:100으로 준비하였다.

먼저, 두 활물질은 혼합 비율에 맞게 잘 섞은 후, 분체저항 및 압착밀도를 Powder Resistivity Measurement System (HPRM-M2, 한테크) 장비에서 800 kgf 압력을 인가하여 측정하였다. 이후, 각각의 혼합 비율에 따라 전극을 제조하였다. 양극 활물질, 도전재, 바인더의 질량비는 90:5:5로 고정하였으며, 이를 혼합하여 슬러리를 제조한 후, 베이커 블레이드를 이용해 알루미늄 집전체(20 μm) 위에 코팅하였다. 도전재로는 Super-P 카본블랙을 사용하였고, 바인더로는 polyvinylidene fluoride (PVDF, KF1100, Kureha Corp.)를 사용하였다. 코팅된 전극은 120 °C에서 15분간 건조하여 용매를 제거한 후 압연하였다. 전극의 로딩 레벨은 $2.0 \pm 0.1 \text{ mAh cm}^{-2}$ 로 맞추고 기공도는 $33 \pm 3\%$ 범위로 제작하였다.

제조된 전극은 Electrode Resistance Measurement System (RM2610, HIOKI)을 사용하여 전극의 비저항(volume resistivity)을 측정하였고, 이 전극을 11 mm 직경으로 펀칭한 후 120 °C에서 8시간 동안 진공 건조하여 잔류 수분을 제거하였다. 이후, 아르곤 가스가 충전된 글러브 박스 내로 전극을 옮겨 전지를 조립하였다. 동시에 완전지 제조를 위해 천연 흑연(natural graphite, BTR)을 음극으로 사용하였다. 천연 흑연: Super-P: carboxymethyl cellulose (CMC, MTI Corp.): styrene butadiene rubber (SBR, ZEON Co., LTD.)의 비율을 93:2:2.5:2.5로 하여 증류수와 혼합하여 슬러리를 제조하였다. 제조된 슬러리는 구리 집전체에 코팅한 후 85 °C에서 15분간 건조하고 압연하였다. 전극의 로딩 레벨은 $2.3 \pm 0.1 \text{ mAh cm}^{-2}$ 로 설정하여 N/P 비율을 1.15~1.2로 맞추었으며, 기공도는 $33 \pm 3\%$

범위로 제작하였다. 압연된 전극을 13 mm 직경으로 펀칭한 후 동일한 방법으로 글러브 박스에 투입하여 전지를 제조하였다.

전지의 조립은 2032 코인셀 부품을 사용하여 반쪽 전지 및 완전지를 조립하였다. 반쪽 전지의 경우, 작동 전극은 직경 11 mm인 양극을 사용하였으며, 반대 전극은 직경 16 mm, 두께 300 μm 인 리튬 메탈을 사용하였다. 완전지의 경우 직경 11 mm의 양극과 직경 13 mm인 천연 흑연 음극을 사용하였다. 전해액은 1 M LiPF_6 염을 ethylene carbonate (EC)와 ethylmethyl carbonate (EMC)가 3:7 부피비로 혼합된 용매에 녹여 사용하였고, 5 wt.%의 fluoroethylene carbonate (FEC)를 전해액 첨가제로 사용하였다. 분리막은 다공성의 polypropylene (PP, Celgard) 필름을 사용하였다.

제조된 반쪽 전지는 25 $^{\circ}\text{C}$ 의 항온조에 넣은 후, 충방전기(cycler, WBCS 3000Le, Wonatech corp.)를 사용하여 전기화학적 특성을 평가하였다. 충전 및 방전 전압은 각각 4.3 V와 2.5 V (vs. Li/Li^+)까지 정전류로 진행하였다. 먼저 0.1C 전류로 3 사이클을 진행하여 화성을 진행한 이후, 충전 및 방전전류를 동일하게 0.2, 0.5, 1, 2, 5, 0.1C로 변경하며 각각 3 사이클씩 순차적으로 평가를 진행하였다. 그리고, 사이클 수명평가는 완전지를 사용하여 진행하였다. 먼저, 0.1C 전류로 3 사이클을 진행한 이후, 충전 및 방전 전류를 모두 0.5C로 설정하고 사이클 특성을 평가하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1(a,b)에 NCM622 및 LMFP64 활물질의 주사전자 현미경 사진을 나타내었다. NCM622의 경우 평균입도 11.4 μm 로 구형의 입자를 가지고 있으며, LMFP64의 경우 평균입도는 0.99 μm 로 알려져 있으나 실제 1차입자는 더욱 작은 나노크기를 지닌 것으로 관찰되었다. 이를 800 kgf의 압력을 인가한 상태에서 혼합비율에 따른 압착밀도(compression density)와 분체저항(powder resistivity)를 측정하여 Fig. 1(c)에 나타내었다. NCM622과 LMFP64 입자를 혼합하면 NCM622의 진밀도가 약 4.89 g cm^{-3} 으로 LMFP64의 3.6 g cm^{-3} 보다 크기 때문에 NCM의 함량이 높을수록 혼합물의 압착밀도가 증가한다. 그러나 75% NCM622과 25% LMFP64로 구성된 혼합조성에서는 크기가 작은 LMFP64 입자가 NCM622 입자 사이의 빈공간을 채우면서 오히려 압착밀도가 높아졌다. 또한 LMFP64의 분체저항은 10.4 $\text{M}\Omega\text{ cm}$ 로 NCM622의 14.5 $\text{M}\Omega\text{ cm}$ 보다 작은 값을 가지며, 이는 LMFP64의 경우 탄소가 코팅되어 있기 때문이다. 하지만, 이 두 종류의 입자를 혼합하게 되는 경우에 LMFP64 단

독보다 압착밀도가 높아지면서 접촉이 향상되어 오히려 분체저항이 감소하는 특성을 나타낸다. 분체저항과 압착밀도는 반비례하는 경향을 보이며 압착밀도가 가장 높은 25%의 LMFP64가 혼합된 경우에서 분체저항이 9.0 $\text{M}\Omega\text{ cm}$ 로 가장 작은 값을 나타내었다.

두 활물질의 혼합비율이 다른 전극을 제조하여 전극저항 측정기를 사용해 전극층의 비저항(volume resistivity)을 측정한 결과를 Fig. 2에 나타내었다. LMFP64의 상대적인 비율이 증가함에 따라 전극의 비저항은 선형적으로 증가하는 경향을 나타내었다. 이는 LMFP64의 분체저항이 NCM622의 보다 작은 Fig. 1(a)의 결과와는 반대의 경향이다. 이는 분체저항이 활물질 분말 자체의 전도도를 반영하는 반면, 전극저항 측정에서는 도전체인 카본블랙에 의한 전도성 네트워크 형성이 주요한 역할을 하며 LMFP64의 나노크기의 입자는 카본블랙 간의 접촉을 차단하면서 네트워크를 방해할 가능성이 크다. NCM622 단독전극의 경우, 마이크로 크기의 활물질 입자를 가지고 있어 동일한 양의 도전재를 사용할 경우 전자전달 채널형성이 잘 이루어져 비저항이 1.5 $\Omega\text{ cm}$ 로 나타났다. 반면에 LMFP64 전극의 경우 전도성 네트워크가 형성이 어려워 비저항 값이 6.2 $\Omega\text{ cm}$ 로 4배 이상 증가하였다. 결과적으로, NCM622의 비율이 증가함에 따라 전극의

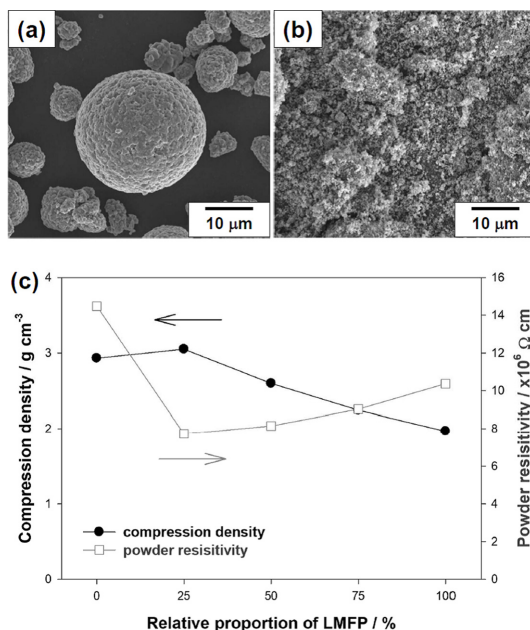


Fig. 1. SEM images of (a) $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.2}\text{O}_2$ (NCM622) and (b) $\text{LiMn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{PO}_4$ (LMFP64) powders, along with (c) compression density and powder resistivity of NCM622, LMFP64, and their mixtures.

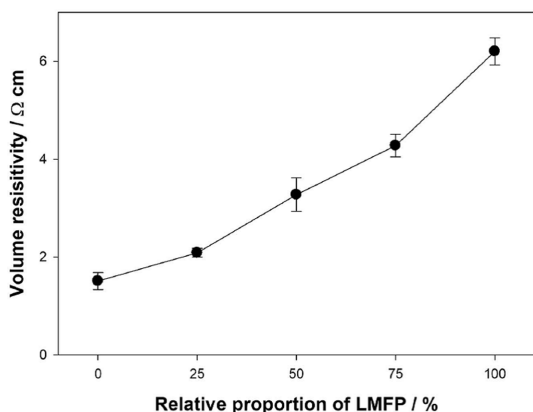


Fig. 2. Volume resistivity of NCM622, LMFP64, and their blended electrodes.

비저항이 감소하는 경향을 확인할 수 있었으며, 이는 NCM622의 상대적으로 큰 입자가 전도성 네트워크 형성에 유리한 특성을 제공하는 것으로 해석된다.

Fig. 3은 혼합비율에 따른 전극의 SEM 결과이다. Fig. 3(a)의 NCM622 단독으로 제조된 전극의 표면에서는 마이크로 크기의 구형 입자들이 관찰되며, 이로 인해 입자들 사이에 빈 공간들이 존재한다. LMFP64의 함량이 증가할수록 LMFP64입자가 NCM622 입자들 사이를 채우는 것이 확인되며, 50%이상의 LMFP64가 사용된 전극에서는 작은 입자의 함량증가로 인해 전극 표면이 더욱 매끄럽고 균일한 분포를 나타낸다. 두 활물질의 혼합을 통해 NCM622 입자들 사이의 빈 공간을 LMFP64 나노 입자가 효과적으로 채워지면서 LMFP64의 비율이 증가함에 따라 빈 공간이 점차 줄어드는 경향을 보였다.

Fig. 4(a)는 NCM622과 LMFP64의 혼합비율에 따라 제조된 전극을 사용하여 제작한 반쪽전지의 충방전 결과 중에서 0.1C의 전류로 진행된 3번째 사이클에서 용량-전압 곡선을 나타낸 그래프이다. NCM622 전극은 완만한 기울기(slope)의 전압변화를 나타내는 반면, LMFP64 전극은 Fe와 Mn의 산화/환원이 각각 3.5 V 및 4.1 V (vs. Li/Li^+)에서 뚜렷한 평탄부(plateau)를 나타내며 반응이 진행되었다. 이러한 경향은 알려진 바와 같은 두 활물질의 고유한 전기화학적 특성에 의한 것이다. NCM622 비율이 증가함에 따라 무게당 용량이 증가하는 경향을 보였으며, 이는 NCM622가 177.4 mAh g^{-1} 의 용량을 가지며 LMFP64의 142.7 mAh g^{-1} 보다 높은 용량을 제공하기 때문이다. 평균방전 전압은 NCM622이 3.83 V (vs. Li/Li^+)이며 LMFP64의 혼합비율이 증가할수록 감소하여 LMFP64는 3.76 V (vs. Li/Li^+)를 나타내었으며, 혼합조성 모

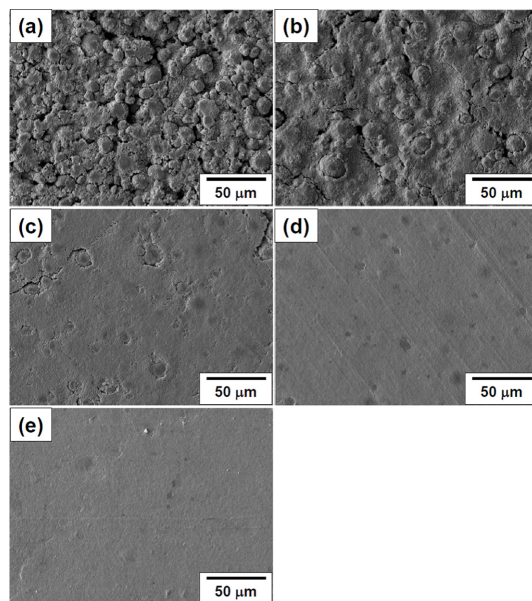


Fig. 3. SEM images of NCM622, LMFP64, and their blended electrodes: (a) NCM622, (b) NCM622:LMFP64 = 75:25, (c) NCM622:LMFP64 = 50:50, (d) NCM622:LMFP64 = 25:75, and (e) LMFP64.

두에서 2% 이내의 유사한 방전전압을 나타내었다. NCM622의 함량이 증가할수록 용량 및 반응전압이 모두 증가하지만, 반응전압 보다는 용량의 차이가 예너지 밀도에 더 큰 영향을 미칠 것으로 예상된다.

Fig. 4(b)는 NCM622과 LMFP64의 혼합 비율에 따른 3번째 사이클에서의 용량차분(dQ/dV) 곡선을 나타낸 그래프이다. dQ/dV 곡선에서 LMFP64는 Fe와 Mn의 산화환원 반응으로 각각 3.5 V와 4.1 V (vs. Li/Li^+) 부근에서 뚜렷한 피크를 나타내며, NCM622은 3.6 V (vs. Li/Li^+) 이상에서 완만한 peak를 형성하면서 4.3 V (vs. Li/Li^+)까지 지속적으로 용량을 발현하고 있다. 두 활물질을 혼합하여 제조한 전극에서는 각 활물질에서 독립적으로 반응이 발생함을 확인할 수 있다. 이를 보다 명확히 확인하기 위하여 Fig. 5는 NCM622과 LMFP64의 혼합비율에 따라 제조된 전지의 전기화학적 평가결과에서 3번째 사이클에서의 방전용량과 첫 사이클에서의 쿨롱효율(coulombic efficiency)을 조성별로 비교한 결과를 나타냈다. 그래프에서 확인할 수 있듯이 NCM622 및 LMFP64가 갖는 비율과 초기효율의 값이 혼합비율에 따라 선형적으로 변화하는 경향을 보였다. NCM622과 LMFP64를 단독으로 적용한 전지의 가역용량은 각각 177.4 mAh g^{-1} 와 142.7 mAh g^{-1} 이었으며, 혼합전극의 가역용량은

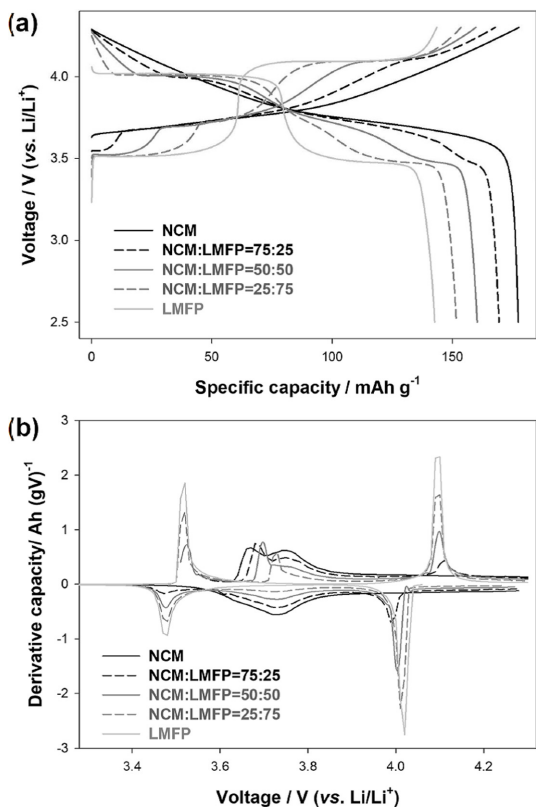


Fig. 4. (a) Galvanostatic charge/discharge voltage profiles and (b) derivative capacity plots (dQ/dV) of NCM622, LMFP64, and their blended electrodes at the 3rd cycle in half-cells with Li metal.

LMFP64의 혼합비율이 25, 50, 75 wt.%로 증가함에 따라 각각 169.5, 160.3, 151.7 mAh g^{-1} 로 감소하는 경향을 보였다. 이는 혼합 비율에 따라 선형적으로 감소하는 양상을 나타낸다. 또한, 첫 번째 사이클에서의 초기 쿨롱효율은 NCM622과 LMFP64가 각각 88.8%와 96.0%로 LMFP64가 높은 초기효율을 보였다. 혼합전극의 초기효율은 LMFP64의 혼합비율이 25, 50, 75 wt.%로 증가함에 따라 각각 90.2, 91.9, 93.8%로 증가하는 경향을 나타냈으며, 이는 혼합 비율에 선형적으로 비례하는 양상을 보였다. LMFP64의 함량이 증가할수록 비용량은 감소하고 초기효율이 증가하는 경향이 확인되었다. 이는 두 활물질을 혼합하여 전극을 구성하였음에도 불구하고, 각 활물질의 용량과 효율에 기반한 고유한 전기화학적 특성이 독립적으로 발현되고 있음을 의미한다. 이러한 특성은 조성에 따른 전극 성능을 예측할 수 있도록 하며, 이를 바탕으로 필요한 성능을 구현할 수 있는 전극설계를 효과적으

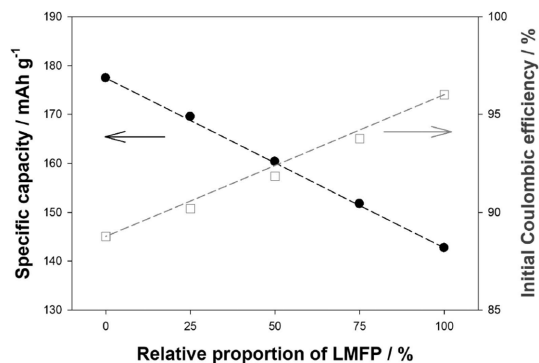


Fig. 5. Specific capacity and initial Coulombic efficiency of NCM622, LMFP64, and their blended electrodes in half-cells with Li metal at a 0.1C current.

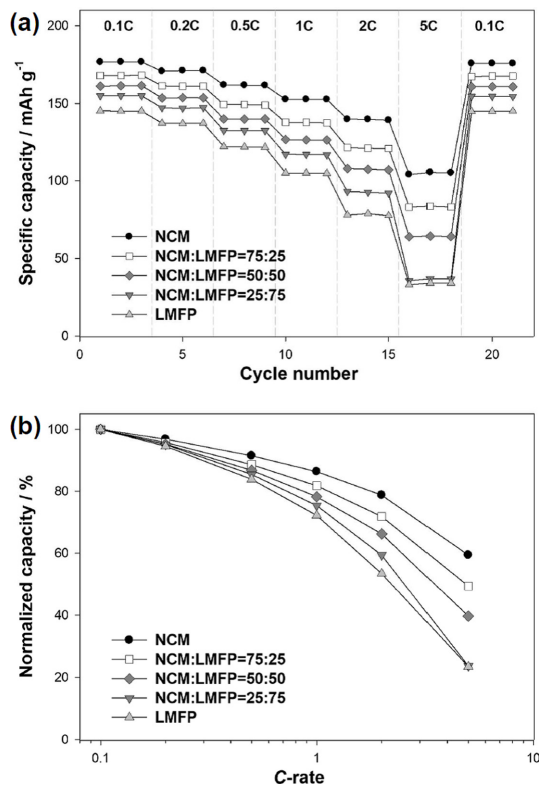


Fig. 6. (a) Rate capability and (b) normalized capacity of NCM622, LMFP64, and their blended electrodes in half-cells with Li metal under various charge/discharge current conditions from 0.1C to 5C.

로 가능하게 한다.

Fig. 6는 NCM622과 LMFP64의 혼합비율에 따른 전기화학적 속도특성을 상온(25 °C)에서 방전전지로 평

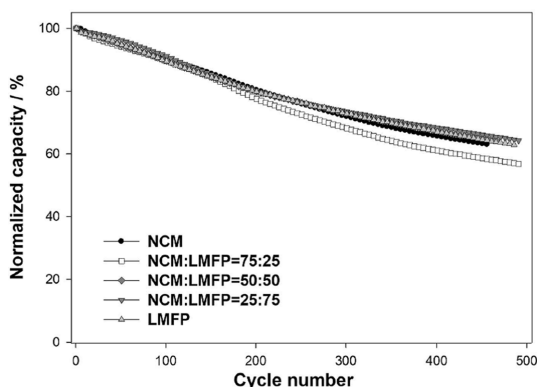


Fig. 7. Normalized cycle performance of NCM622, LMFP64, and their blended electrodes in coin-type full cells with a natural graphite negative electrode at a 0.5C current after a formation step of 3 cycles at 0.1C.

가한 결과이다. 전류 크기를 0.1C에서 5C까지 충전 및 방전 시에 동일한 값으로 높여가며 인가하여 진행하였다. Fig. 6(a)의 결과를 보면, NCM622의 무게당 용량이 LMFP64보다 크기 때문에 NCM622의 함량이 클수록 높은 용량을 나타내었다. 그리고 모든 전류조건에서 NCM622의 함량이 클수록 높은 용량을 가지는 동일한 경향이 관찰되었다. 이를 좀 더 상세히 비교하기 위하여 0.1C 전류에서의 용량을 기준으로 각각의 전류에서의 상대적인 값으로 도시하여 Fig. 6(b)에 다시 나타내었다. 이를 보면 용량의 절대적인 크기도 NCM622이 높지만, 전류크기의 증가에 따른 상대적인 용량유지율도 NCM622의 함량이 클수록 증가하는 경향을 가지고 있었다.

Fig. 7은 혼합비에 따른 전극의 사이클 수명특성을 코인셀 형태의 완전지에서 평가한 결과를 나타낸 것이다. 평가는 0.1C의 전류로 3회 화성 사이클을 진행한 후에, 0.5C의 전류로 상온에서 충방전을 수행한 결과이다. 약 500 사이클 동안 모든 조성에서 용량이 완만하게 감소하는 경향을 보였다. LMFP64가 25% 투입된 조성에서 퇴화가 다소 빠르게 발생하기는 하였으나, 대부분의 조성에서 모두 안정적인 수명특성을 나타내었으며, 조성차이가 수명에 큰 영향을 미치지 않는 것으로 판단되었다.

결론적으로, NCM622보다 LMFP64의 경우가 안전성과 가격에서 큰 장점을 지니고 있어 혼합전극의 필요성이 분명하다. 그러나, 성능측면에서만 보면 LMFP64의 혼합은 장점이 되기는 어려울 것이다. 하지만 이차전지의 성능뿐만 아니라 안전성과 가격의 중요성이 증가하고 있기 때문에, 이러한 혼합전극의 활용 가능성이 점차 증가할 것으로 예상된다.

4. 결 론

높은 용량과 우수한 전기화학적 성능을 갖춘 NCM622 양극 활물질과 높은 안전성과 가격 경쟁력을 지닌 LMFP64를 혼합하여 리튬이온 이차전지용 양극을 구성하고, 이에 대한 전기화학적 특성을 비교하였다.

(i) 마이크로 크기의 NCM622 입자와 나노 크기의 LMFP64 입자가 혼합될 경우, 소량의 LMFP64 첨가는 NCM622 입자 사이의 공간을 채워 전극의 밀도를 증가시킬 수 있다. 그러나 LMFP64의 낮은 밀도로 인해 이의 함량이 증가하면 밀도가 낮아지는 경향을 보였다.

(ii) 활물질 자체의 전도도는 탄소가 코팅된 LMFP64가 NCM622보다 우수하였으나, 카본블랙을 포함하는 혼합전극을 제조한 경우, LMFP64의 함량이 증가할수록 작은 LMFP64 입자가 카본블랙의 채널 형성을 방해하여 전극의 비저항이 오히려 증가하여 불리해지는 경향을 나타내었다.

(iii) NCM622과 LMFP64를 혼합하여 제조한 전극의 전기화학적 성능은 각 활물질이 가진 고유한 전기화학적 특성이 혼합비에 따라 발현되었다. LMFP64의 함량이 증가할수록 전극의 용량 및 속도 특성은 이에 비례하여 감소하였으나, 초기 효율은 증가하였다. 완전지를 제조하여 평가한 사이클 수명은 혼합비와 관계없이 전반적으로 유사한 성능을 보였다.

이와 같이, 상호보완적 특성을 지닌 NCM622 및 LMFP64를 혼합하여 전극을 제조할 경우, 전기화학적 성능은 주로 두 재료의 혼합비에 따라 결정되므로, 요구되는 특성에 맞춰 다양한 전극 설계가 가능할 것으로 기대된다.

Acknowledgments

이 연구는 2024년도 산업통상자원부 및 한국산업기술평가원(KEIT) 연구비 지원(20017477, 소재부품 기술개발사업)을 받아 수행된 연구임.

References

1. T.-H. Kim, J.-S. Park, S. K. Chang, S. Choi, J. H. Ryu, and H.-K. Song, The current move of lithium ion batteries towards the next phase, *Adv. Energy Mater.*, **2**(7), 860 (2012).
2. J. M. Tarascon and M. Armand, Issues and challenges facing rechargeable lithium batteries, *Nature*, **414**, 359 (2001).
3. N. Nitta, F. Wu, J. T. Lee, and G. Yushin, Li-ion battery

- materials: present and future, *Mater. Today*, **18**(5), 252 (2015).
4. S. Y. Jeong, S. Lee, H. Lee, K.-M. Roh, C.-W. Lee, I. Jeong, and M. S. Chae, Thermal characteristics of $\text{LiMn}_x\text{Fe}_{1-x}\text{PO}_4$ ($x = 0, 0.6$) cathode materials for safe lithium-ion batteries, *J. Power Sources*, **626**, 235755 (2025).
 5. D.-S. Kim, J.-K. Kim, and J.-H. Ahn, Manganese doped LiFePO_4 as a cathode for high energy density lithium batteries, *J. Korean Electrochem. Soc.*, **16**(3), 157 (2013).
 6. D. Guo, S. Chu, B. Zhang, and Z. Li, The development and prospect of stable polyanion compound cathodes in LIBs and promising complementers, *Small Methods*, **8**(12), 2400587 (2024).
 7. S. Y. Kim, S.-H. Choi, E. J. Lee, and J.-S. Kim, Synthesis and electrochemical performance of Ni-rich NCM cathode materials for lithium-ion batteries, *J. Korean Electrochem. Soc.*, **20**(4), 67 (2017).
 8. J. Yang, X. Liang, H.-H. Ryu, C. S. Yoon, and Y.-K. Sun, Ni-rich layered cathodes for lithium-ion batteries: From challenges to the future, *Energy Storage Mater.*, **63**, 102969 (2023).
 9. S. B. Chikkannanavar, D. M. Bernardi, and L. Liu, A review of blended cathode materials for use in Li-ion batteries, *J. Power Sources*, **248**, 91 (2014).
 10. L. Zhu, T.-F. Yan, D. Jia, Y. Wang, Q. Wu, H.-T. Gu, Y.-M. Wu, and W.-P. Tang, LiFePO_4 -coated $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_2$ cathode materials with improved high voltage electrochemical performance and enhanced safety for lithium ion pouch cells, *J. Electrochem. Soc.*, **166**(3), A5437 (2019).
 11. X. Zhao, L. An, J. Sun, and G. Liang, $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_2$ - $\text{LiMn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{PO}_4$ mixture with both excellent electrochemical performance and low cost as cathode material for power lithium ion batteries, *J. Electrochem. Soc.*, **165**(2), A142 (2018).
 12. K. He, Y. Xiong, C. Zhang, Z. Dou, T. Yi, S. Lin, C. Li, and Y. Sun, An investigation on the electrochemical and thermal characteristics of $\text{LiMn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{PO}_4/\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_2$ composite cathode materials for lithium-ion batteries in different health states, *J. Electrochem. Soc.*, **170**, 090501 (2023).
 13. H. Kang, Y. Kim, T. Yoon, and J. Mun, Improved performance of lithium-ion batteries using a multilayer cathode of LiFePO_4 and $\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{O}_2$, *J. Electrochem. Sci. Technol.*, **14**(4), 320 (2023).
 14. G. Sun, S. Lai, X. Kong, Z. Chen, K. Li, R. Zhou, J. Wang, and J. Zhao, Synergistic effect between $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_2$ and $\text{LiFe}_{0.15}\text{Mn}_{0.85}\text{PO}_4/\text{C}$ on rate and thermal performance for lithium ion batteries, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **10**(19), 16458 (2018).