



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2022-0095527  
(43) 공개일자 2022년07월07일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

H01M 4/62 (2006.01) H01G 11/38 (2013.01)

H01M 4/02 (2006.01) H01M 4/13 (2010.01)

(52) CPC특허분류

H01M 4/621 (2013.01)

H01G 11/38 (2013.01)

(21) 출원번호 10-2020-0187136

(22) 출원일자 2020년12월30일

심사청구일자 2020년12월30일

(71) 출원인

울산대학교 산학협력단

울산광역시 남구 대학로 93(무거동)

(72) 발명자

오은석

울산광역시 남구 대학로 164 웰츠타워 103동 1006호

제염춘효

울산광역시 남구 대학로 93 1호관 402호

(74) 대리인

남건필, 박종수, 차상윤

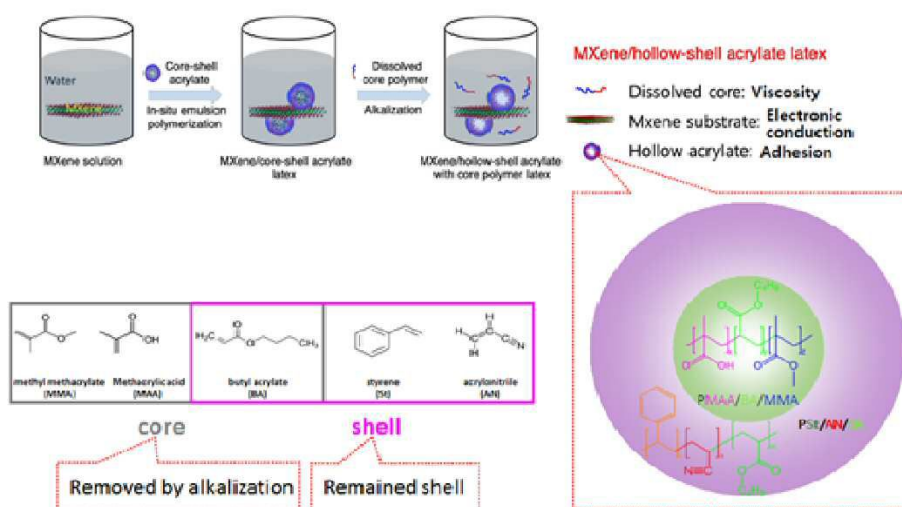
전체 청구항 수 : 총 13 항

(54) 발명의 명칭 전극 합제용 복합체 바인더 재료, 이의 제조방법, 이를 이용한 전극 페이스트 조성물의 제조 방법 및 에너지 저장 장치용 전극 구조체

(57) 요약

전극 합제용 복합체 바인더 재료가 개시된다. 전극 합제용 복합체 바인더 재료는 2차원 시트 구조의 맥세인(MXene) 입자; 및 상기 맥세인(MXene) 입자의 표면에 결합되고, 내부에 중공이 형성된 입자 형태의 고분자 재료를 구비한다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

**H01M 4/13** (2013.01)

H01M 2004/021 (2013.01)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

|                 |                                                  |
|-----------------|--------------------------------------------------|
| 과제고유번호          | 1415168930                                       |
| 과제번호            | 20009866                                         |
| 부처명             | 산업통상자원부                                          |
| 과제관리(전문)기관명     | 한국산업기술평가관리원                                      |
| 연구사업명           | 소재부품기술개발(R&D)                                    |
| 연구과제명           | 급속충전(10분 이내) 이차전지용 10 Nm 이상의 접착력을 갖는 코어 셀 아크릴계 바 |
| 인더 소재 상업화 기술 개발 |                                                  |
| 기 여 율           | 1/1                                              |
| 과제수행기관명         | (주)에코케미칼                                         |
| 연구기간            | 2020.04.01 ~ 2020.12.31                          |

---

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

2차원 시트 구조의 맥세인(MXene) 입자; 및

상기 맥세인(MXene) 입자의 표면에 결합되고, 내부에 중공이 형성된 입자 형태의 고분자 재료를 포함하는, 전극 합제용 복합체 바인더 재료.

#### 청구항 2

제1항에 있어서,

상기 고분자 재료는 에틸렌계 단량체, 아미드계 단량체, 카르본산계 단량체, (메타)아크릴산 에스테르계 단량체 및 이들 중 하나로부터 유래된 단량체로 이루어진 그룹에서 선택된 1종 이상의 중합체를 포함하는 것을 특징으로 하는, 전극 합제용 복합체 바인더 재료.

#### 청구항 3

제1항에 있어서,

상기 고분자 재료는 부틸아크릴레이트계 단량체, 스티렌계 단량체, 아크릴로니트릴계 단량체, 불포화 모노카르본산계 단량체, 불포화 디카르본산계 단량체, 이들 중 하나로부터 유래된 단량체 등으로 이루어진 그룹에서 선택된 1종 이상의 중합체를 포함하는 것을 특징으로 하는, 전극 합제용 복합체 바인더 재료.

#### 청구항 4

제1항에 있어서,

상기 고분자 재료 100 중량부를 기준으로 상기 맥세인 입자를 0.5 내지 5.0 중량부 포함하는 것을 특징으로 하는, 전극 합제용 복합체 바인더 재료.

#### 청구항 5

제1항에 있어서,

상기 맥세인 입자들은 상기 고분자 매트릭스의 중량을 기준으로 0.1 내지 30 중량% 포함된 것을 특징으로 하는, 전극 합제용 복합체 바인더 재료.

#### 청구항 6

제1항에 있어서,

상기 고분자 재료는 80 내지 600 nm의 크기를 갖는 중공형 입자 구조를 갖는 것을 특징으로 하는, 전극 합제용 복합체 바인더 재료.

#### 청구항 7

용매에 고분자 코어를 형성하기 위한 제1 고분자 단량체를 첨가한 후 중합시켜 고분자 코어를 형성하는 제1 단계;

상기 고분자 코어 및 맥세인 입자의 분산 용액에 상기 고분자 코어를 둘러싸는 고분자 셸을 형성하기 위한 제2 고분자 단량체를 첨가한 후 중합시켜 상기 맥세인 입자 표면에 결합되고 상기 고분자 코어를 피복하는 고분자 셸을 형성하는 제2 단계; 및

상기 고분자 코어를 녹여내는 제3 단계를 포함하는, 전극 합제용 복합체 바인더 재료의 제조방법.

#### 청구항 8

제7항에 있어서,

상기 제1 고분자 단량체의 1차 중합에 의해 시드(seed)를 형성한 후 이를 이용하여 상기 제1 고분자 단량체를 2차 중합시킴으로서 상기 고분자 코어를 형성하는 것을 특징으로 하는, 전극 합제용 복합체 바인더 재료의 제조 방법.

#### 청구항 9

제7항에 있어서,

상기 제1 고분자 단량체는 스티렌계 단량체, 에틸렌계 단량체, 아미드계 단량체, 카르본산계 단량체, (메타)아크릴산 에스테르계 단량체 및 이들 중 하나로부터 유래된 단량체로 이루어진 그룹에서 선택된 1종 이상을 포함하고,

상기 제2 고분자 단량체는 에틸렌계 단량체, 아미드계 단량체, 카르본산계 단량체, (메타)아크릴산 에스테르계 단량체 및 이들 중 하나로부터 유래된 단량체로 이루어진 그룹에서 선택된 1종 이상을 포함하는 것을 특징으로 하는, 전극 합제용 복합체 바인더 재료의 제조방법.

#### 청구항 10

제7항에 있어서,

상기 고분자 코어는 염기성 용액의 첨가에 의한 알칼리화반응(alkalization)에 의해 제거되는 것을 특징으로 하는, 전극 합제용 복합체 바인더 재료의 제조방법.

#### 청구항 11

용매에 고분자 코어를 형성하기 위한 제1 고분자 단량체를 첨가한 후 중합시켜 고분자 코어를 형성하는 제1 단계;

상기 고분자 코어 및 백세인 입자의 분산 용액에 상기 고분자 코어를 둘러싸는 고분자 쉘을 형성하기 위한 제2 고분자 단량체를 첨가한 후 중합시켜 상기 백세인 입자 표면에 결합되고 상기 고분자 코어를 피복하는 고분자 쉘을 형성하는 제2 단계;

상기 고분자 코어를 녹여내는 제3 단계; 및

상기 고분자 코어로부터 유래된 물질을 함유하는 상기 용액에 전극 활물질을 첨가하는 제4 단계를 포함하는, 전극 페이스트 조성물의 제조방법.

#### 청구항 12

제11항에 있어서,

상기 전극 활물질은 탄소계 물질, 실리콘계 물질, 주석계 물질 및 리튬 금속으로 이루어진 그룹에서 선택된 하나 이상을 포함하는 것을 특징으로 하는, 전극 페이스트 조성물의 제조방법.

#### 청구항 13

집전체; 및

상기 집전체 일면에 코팅된 음극 활물질 코팅층을 포함하고,

상기 음극 활물질 코팅층은 전극 활물질 및 상기 전극 활물질을 상기 집전체에 결합시키는 복합체 바인더 재료를 포함하고,

상기 복합체 바인더 재료는 2차원 시트 구조의 백세인(MXene) 입자 및 상기 백세인(MXene) 입자의 표면에 결합되고, 내부에 중공이 형성된 입자 형태의 고분자 재료를 포함하는, 에너지 저장 장치용 전극 구조체.

#### 발명의 설명

## 기술 분야

[0001] 본 발명은 전극 활물질들을 집전체에 결합시키는 전극 합제용 복합체 바인더 재료, 이의 제조방법, 이를 포함하는 전극 페이스트 조성물의 제조방법 및 상기 전극 합제용 복합체 바인더 재료를 포함하는 에너지 저장 장치용 전극 구조체에 관한 것이다.

## 배경 기술

[0002] 최근 들어 다양한 모바일 기기, 전기 자동차 등의 전력원이나 에너지 저장 장치로 이차전지, 슈퍼커패시터 등이 많이 연구되고 있다. 특히, 최근에는 이러한 에너지 저장 장치의 급속 충전 성능, 장기적 안정성 및 수명 특성, 높은 에너지밀도 성능 등이 요구되고 있다.

[0003] 상기 이차전지, 슈퍼 커패시터 등의 에너지 저장장치의 전극은 전극반응에 참여하는 활물질 코팅층을 집전체에 결합시킨 구조를 갖고, 상기 활물질 코팅층이 에너지 저장 장치의 성능에 많은 영향을 미친다. 특히, 상기 이차전지, 슈퍼 커패시터 등의 에너지 저장장치의 전극 중 음극 활물질 코팅층이 높은 저항값을 가지는 경우, 상기 에너지 저장장치의 충방전 속도가 저하되고 에너지 밀도가 감소하는 문제점이 발생하므로, 상기 음극 활물질 코팅층의 저항값을 낮출 수 있는 바인더 소재의 개발이 요구되고 있다.

[0004] 그리고, 최근 리튬이차전지 등에 있어서, 현재 적용되고 있는 탄소계 음극 활물질에 비해 이론적 용량이 현저하게 큰 실리콘계, 주석계 음극 활물질에 대한 연구가 많이 진행되고 있는데, 이러한 실리콘계, 주석계 음극 활물질은 충방전시 체적 변화가 크므로, 이를 안정적으로 결합시킬 수 있는 바인더 소재의 개발이 요구되고 있다.

[0005] 또한, 환경적인 측면이나 제조 공정의 유해성 측면에서, 유해한 유기 용매가 아니라 수계 용매를 사용하여 전극을 형성할 수 있는 바인더 소재의 개발이 요구되고 있다.

## 발명의 내용

### 해결하려는 과제

[0006] 본 발명의 일 목적은 이온 전도도가 높고, 저항값이 낮으면서도 접착력 및 기계적 물성이 우수한 전극 합제용 복합체 바인더 재료를 제공하는 것이다.

[0007] 본 발명의 다른 목적은 상기 전극 합제용 복합체 바인더 재료의 제조방법을 제공하는 것이다.

[0008] 본 발명의 또 다른 목적은 상기 전극 합제용 복합체 바인더 재료를 포함하는 전극 페이스트 조성물의 제조방법을 제공하는 것이다.

[0009] 본 발명의 또 다른 목적은 상기 전극 합제용 복합체 바인더 재료를 포함하는 에너지 저장 장치용 전극 구조체를 제공하는 것이다.

### 과제의 해결 수단

[0010] 본 발명의 실시예에 따른 전극 합제용 복합체 바인더 재료는 2차원 시트 구조의 맥세인(MXene) 입자; 및 상기 맥세인(MXene) 입자의 표면에 결합되고, 내부에 중공이 형성된 입자 형태의 고분자 재료를 포함한다.

[0011] 일 실시예에 있어서, 상기 고분자 재료는 에틸렌계 단량체, 아미드계 단량체, 카르복산계 단량체, (메타)아크릴산 에스테르계 단량체 및 이들 중 하나로부터 유래된 단량체로 이루어진 그룹에서 선택된 1종 이상의 중합체를 포함할 수 있다. 예를 들면, 상기 고분자 재료는 부틸아크릴레이트계 단량체, 스티렌계 단량체, 아크릴로니트릴계 단량체, 불포화 모노카르복산계 단량체, 불포화 디카르복산계 단량체, 이들 중 하나로부터 유래된 단량체 등으로 이루어진 그룹에서 선택된 1종 이상의 중합체를 포함할 수 있다.

[0012] 일 실시예에 있어서, 상기 고분자 재료 100 중량부를 기준으로 상기 맥세인 입자를 0.5 내지 5.0 중량부 포함할 수 있다.

[0013] 일 실시예에 있어서, 상기 맥세인 입자들은 상기 고분자 매트릭스의 중량을 기준으로 0.1 내지 30 중량% 포함될 수 있다.

[0014] 일 실시예에 있어서, 상기 고분자 재료는 80 내지 600 nm의 크기를 갖는 중공형 입자 구조를 가질 수 있다.

[0015] 본 발명의 실시예에 따른 전극 합제용 복합체 바인더 재료의 제조방법은 용매에 고분자 코어를 형성하기 위한

제1 고분자 단량체를 첨가한 후 중합시켜 고분자 코어를 형성하는 제1 단계; 상기 고분자 코어 및 맥세인 입자의 분산 용액에 상기 고분자 코어를 둘러싸는 고분자 셸을 형성하기 위한 제2 고분자 단량체를 첨가한 후 중합시켜 상기 맥세인 입자 표면에 결합되고 상기 고분자 코어를 피복하는 고분자 셸을 형성하는 제2 단계; 및 상기 고분자 코어를 녹여내는 제3 단계를 포함한다.

[0016] 일 실시예에 있어서, 상기 제1 고분자 단량체의 1차 중합에 의해 시드(seed)를 형성한 후 이를 이용하여 상기 제1 고분자 단량체를 2차 중합시킴으로서 상기 고분자 코어를 형성할 수 있다.

[0017] 일 실시예에 있어서, 상기 제1 고분자 단량체는 스티렌계 단량체, 에틸렌계 단량체, 아미드계 단량체, 카르본산계 단량체, (메타)아크릴산 에스테르계 단량체 및 이들 중 하나로부터 유래된 단량체로 이루어진 그룹에서 선택된 1종 이상을 포함하고, 상기 제2 고분자 단량체는 에틸렌계 단량체, 아미드계 단량체, 카르본산계 단량체, (메타)아크릴산 에스테르계 단량체 및 이들 중 하나로부터 유래된 단량체로 이루어진 그룹에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다.

[0018] 일 실시예에 있어서, 상기 고분자 코어는 염기성 용액의 첨가에 의한 알칼리화반응(alkalization)에 의해 제거될 수 있다.

[0019] 본 발명의 실시예에 따른 전극 페이스트 조성물의 제조방법은 용매에 고분자 코어를 형성하기 위한 제1 고분자 단량체를 첨가한 후 중합시켜 고분자 코어를 형성하는 제1 단계; 상기 고분자 코어 및 맥세인 입자의 분산 용액에 상기 고분자 코어를 둘러싸는 고분자 셸을 형성하기 위한 제2 고분자 단량체를 첨가한 후 중합시켜 상기 맥세인 입자 표면에 결합되고 상기 고분자 코어를 피복하는 고분자 셸을 형성하는 제2 단계; 상기 고분자 코어를 녹여내는 제3 단계; 및 상기 고분자 코어로부터 유래된 물질을 함유하는 상기 용액에 전극 활물질을 첨가하는 제4 단계를 포함한다.

[0020] 일 실시예에 있어서, 상기 전극 활물질은 탄소계 물질, 실리콘계 물질, 주석계 물질 및 리튬 금속으로 이루어진 그룹에서 선택된 하나 이상을 포함할 수 있다.

[0021] 본 발명의 실시예에 따른 에너지 저장 장치용 전극 구조체는 집전체; 및 상기 집전체 일면에 코팅된 음극 활물질 코팅층을 포함하고, 상기 음극 활물질 코팅층은 전극 활물질 및 상기 전극 활물질을 상기 집전체에 결합시키는 복합체 바인더 재료를 포함하며, 상기 복합체 바인더 재료는 2차원 시트 구조의 맥세인(MXene) 입자 및 상기 맥세인(MXene) 입자의 표면에 결합되고, 내부에 중공이 형성된 입자 형태의 고분자 재료를 포함한다.

### 발명의 효과

[0022] 본 발명의 전극 합제용 복합체 바인더 재료, 이의 제조방법, 이를 포함하는 전극 페이스트 조성물의 제조방법 및 전극 구조체에 따르면, 2차원 구조를 갖고 높은 전기 전도도를 가지며 친수성을 띄는 맥세인 입자들이 중공형 고분자 재료와 결합되어 복합체를 형성하므로, 상기 복합체 바인더 재료의 전기 전도도 및 이온 전도도를 향상시켜 이를 적용한 에너지 저장 장치의 충방전 시간을 감소시킬 수 있다. 그리고 상기 맥세인 입자들은 친수성을 띄므로, 상기 고분자 매트릭스로 친수성 고분자 화합물 또는 유화 형태로 수분산이 가능한 고분자 화합물을 사용하는 경우, 상기 에너지 저장 장치의 전극을 형성하기 위한 슬러리 조성물의 용매로 유기 용매를 사용할 필요 없이, 물과 같은 수계 용매를 사용할 수 있다. 또한, 상기 맥세인 입자들은 상기 고분자 매트릭스와의 혼화성이 매우 우수하여 매우 강한 인장력을 갖는 복합체를 형성하므로, 충방전시 체적 변화가 큰 음극활물질에 대해서도 안정적으로 결합력을 유지할 수 있다.

### 도면의 간단한 설명

[0023] 도 1은 본 발명의 실시예에 따른 전극 합제용 복합체 바인더 재료의 제조방법 및 이에 의해 제조된 전극 합제용 복합체 바인더 재료를 설명하기 위한 도면이다.

도 2a는 중공형 코어셸 고분자에 대한 SEM 이미지 및 TEM 이미지를 각각 나타내고, 도 2b는 중공형 고분자 입자 단독(HCS), 실시예 1에 따라 제조된 복합체 입자(MX1/HCS) 및 실시예 2에 따라 제조된 복합체 입자(MX2/HCS)에 대한 라만 스펙트럼을 나타내며, 도 2c는 중공형 고분자 입자 단독(HCS), 실시예 1에 따라 제조된 복합체 입자(MX1/HCS) 및 실시예 2에 따라 제조된 복합체 입자(MX2/HCS)에 대한 FT-IR 스펙트럼을 나타낸다.

도 3은 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)를 바인더 물질로 적용하여 제조된 바인더 필름들 상에 적하된 전해질 액적의 60초 동안의 접촉각 변화를 측정한 그래프이다.

도 4는 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)를 바인더 물질로 적용하여 제조된 바인더 필름들에 대해 측정된 TGA(Thermogravimetry) 분석 결과를 나타낸다.

도 5는 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)를 바인더 물질로 적용하여 제조된 바인더 필름들에 대해 측정된 이온 전도도를 나타내는 그래프이다.

도 6a 및 도 6b는 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)를 바인더 물질로 적용한 슈퍼커패시터 전극의 질소 흡착/탈착 등은 곡선 및 전극의 포어 직경의 분포를 나타내는 그래프들이다.

도 7a는 알루미늄 포일 상에 형성되고 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)를 각각 포함하는 바인더 필름들에 대해 측정된 CV(Cyclic voltammetry) 결과를 나타내는 그래프들이고, 도 7b는 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)가 각각 바인더로 적용된 EDLCs(Electric Double Layer Capacitors)에 대해 측정된 CV 결과를 나타내는 그래프들이다.

도 8은 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)를 적용한 EDLC 셀들에 대해 측정된 나이퀴스트 플롯(Nyquist plot)을 나타낸다.

도 9a는 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)가 각각 바인더로 적용된 EDLCs(Electric Double Layer Capacitors)에 대해 2.7 내지 1.35V의 전압 영역에서 측정된 방전 사이클에 따른 방전 용량의 변화를 나타내는 그래프이고, 도 9b는 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)가 각각 바인더로 적용된 EDLCs(Electric Double Layer Capacitors)에 대해 다양한 전류 밀도(0.5, 1.05, 5.0, 10.0, 50.0 mA/cm<sup>2</sup>)에서 측정된 방전 사이클에 따른 방전 용량의 변화를 나타내는 그래프이다.

### 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0024] 이하, 본 발명의 실시예에 대해 상세히 설명한다. 본 발명은 다양한 변경을 가할 수 있고 여러 가지 형태를 가질 수 있는 바, 특정 실시 예들을 도면에 예시하고 본문에 상세하게 설명하고자 한다. 그러나 이는 본 발명을 특정한 개시 형태에 대해 한정하려는 것이 아니며, 본 발명의 사상 및 기술 범위에 포함되는 모든 변경, 균등물 내지 대체물을 포함하는 것으로 이해되어야 한다. 각 도면을 설명하면서 유사한 참조부호를 유사한 구성요소에 대해 사용하였다. 첨부된 도면에 있어서, 구조물들의 치수는 본 발명의 명확성을 기하기 위하여 실제보다 확대하여 도시한 것이다.

[0025] 제1, 제2 등의 용어는 다양한 구성요소들을 설명하는데 사용될 수 있지만, 상기 구성요소들은 상기 용어들에 의해 한정되어서는 안 된다. 상기 용어들은 하나의 구성요소를 다른 구성요소로부터 구별하는 목적으로만 사용된다. 예를 들어, 본 발명의 권리 범위를 벗어나지 않으면서 제1 구성요소는 제2 구성요소로 명명될 수 있고, 유사하게 제2 구성요소도 제1 구성요소로 명명될 수 있다.

[0026] 본 출원에서 사용한 용어는 단지 특정한 실시 예를 설명하기 위해 사용된 것으로서 본 발명을 한정하려는 의도가 아니다. 단수의 표현은 문맥상 명백하게 다르게 뜻하지 않는 한, 복수의 표현을 포함한다. 본 출원에서, "포함하다" 또는 "가지다" 등의 용어는 명세서 상에 기재된 특징, 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것이 존재함을 지정하려는 것이지, 하나 또는 그 이상의 다른 특징들이나 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것들의 존재 또는 부가 가능성을 미리 배제하지 않는 것으로 이해되어야 한다.

[0027] 다르게 정의되지 않는 한, 기술적이거나 과학적인 용어를 포함해서 여기서 사용되는 모든 용어들은 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의해 일반적으로 이해되는 것과 동일한 의미를 가지고 있다. 일반적으로 사용되는 사전에 정의되어 있는 것과 같은 용어들은 관련 기술의 문맥 상 가지는 의미와 일치하는 의미를 가지는 것으로 해석되어야 하며, 본 출원에서 명백하게 정의하지 않는 한, 이상적이거나 과도하게 형식적인 의미로 해석되지 않는다.

- [0029] 도 1은 본 발명의 실시예에 따른 전극 합제용 복합체 바인더 재료의 제조방법 및 이에 의해 제조된 전극 합제용 복합체 바인더 재료를 설명하기 위한 도면이다.
- [0030] 도 1을 참조하면, 본 발명의 실시예에 따른 전극 합제용 복합체 바인더 재료의 제조방법은
- [0031] 용매에 고분자 코어를 형성하기 위한 제1 고분자 단량체들 및 계면활성제를 첨가한 후 중합시켜 고분자 코어를 형성하는 제1 단계; 상기 고분자 코어 및 백세인 입자의 분산 용액에 상기 고분자 코어를 둘러싸는 고분자 셸을 형성하기 위한 제2 고분자 단량체들을 첨가한 후 중합시켜 상기 백세인 입자 표면에 결합되고 상기 고분자 코어를 피복하는 고분자 셸을 형성하는 제2 단계; 및 상기 고분자 코어를 녹여내는 제3 단계를 포함할 수 있다.
- [0032] 상기 제1 단계에 있어서, 상기 용매로는 물이 사용될 수 있다. 일 실시예로, 상기 고분자 코어를 형성하기 위해, 먼저 상기 제1 고분자 단량체들의 1차 중합에 의해 시드(seed)를 형성한 후 이를 이용하여 상기 제1 고분자 단량체들을 2차 중합시킴으로서 상기 고분자 코어를 형성할 수 있다.
- [0033] 일 실시예로, 상기 제1 고분자 단량체는 스티렌계 단량체, 에틸렌계 단량체, 아미드계 단량체, 카르복산계 단량체, (메타)아크릴산 에스테르계 단량체, 이들 중 하나로부터 유래된 단량체 등으로 이루어진 그룹에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다.
- [0034] 상기 고분자 코어를 형성하기 위한 중합 방법은 특별히 제한되지 않는다. 일 실시예에 있어서, 상기 용매에 상기 제1 고분자의 단량체를 첨가한 후 중합 개시제를 첨가하여 상기 제1 고분자 단량체를 중합시킴으로써 상기 고분자 코어를 형성할 수 있다. 이 때, 상기 개시제로는 광이나 열에 의해 라디칼을 생성할 수 있는 물질로서, 광 개시제 또는 열 개시제가 사용될 수 있다.
- [0035] 상기 제2 단계에서, 상기 고분자 코어들과 백세인(MXene) 입자들을 용매에 분산시킨 후 상기 제2 고분자 단량체들을 첨가하고, 이어서 이를 중합시켜 상기 백세인 입자 표면에 결합되고 상기 고분자 코어를 피복하는 고분자 셸을 형성할 수 있다.
- [0036] 상기 백세인(MXene) 입자들은 하기 화학식 1의 맥스(MAX) 상의 물질로부터 “ ” 를 선택적으로 식각함으로써 형성될 수 있다. 상기 맥스(MAX) 상의 선택적 식각은 플루오르화수소(HF), 산성불화암모늄(NH<sub>4</sub>HF<sub>2</sub>) 또는 염화수소(HCl)와 플루오르화리튬(LiF)의 혼합물 등에 의해 수행될 수 있다.
- [0037] [화학식 1]
- [0038] 
$$M_{n+1}AX_n$$
- [0039] 상기 화학식 1에서, M은 전이금속 원소를 나타내고, A는 주기율표의 13족 또는 14족 원소를 나타내고, X는 탄소(C) 또는 질소(N)를 나타내며, n은 1 내지 3의 정수를 나타낸다.
- [0040] 상기 백세인(MXene) 입자들은 하기 화학식 2로 표시되는 전이금속 카바이드(carbide), 전이금속 니트라이드(nitride) 또는 전이금속 카보니트라이드(carbonitrides)로 이루어지고, 수개의 원자 층들로 이루어진 2차원 물질일 수 있다. 상기 백세인 입자들은 전기 전도성이 우수할 뿐만 아니라, 표면 말단이 O, F, OH, Cl 등을 함유하는 친수성 작용기를 포함하여 수계 또는 극성 용매에 대한 분산성이 우수하다.
- [0041] [화학식 1]
- [0042] 
$$M_{n+1}X_nT_m$$
- [0043] 상기 화학식 1에서, M은 전이금속 원소를 나타내고, X는 탄소(C) 또는 질소(N)를 나타내며, T는 -O, -F, -OH, -Cl 등의 말단 작용기를 나타내며, n은 1 내지 3의 정수를 나타낸다. 한편 m은 임의의 실수를 나타낸다.
- [0044] 일 실시예에 있어서, 상기 제2 고분자 단량체는 에틸렌계 단량체, 아미드계 단량체, 카르복산계 단량체, (메타)아크릴산 에스테르계 단량체, 이들 중 하나로부터 유래된 단량체 등으로 이루어진 그룹에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다. 예를 들면, 상기 제2 고분자 단량체는 부틸아크릴레이트계 단량체, 스티렌계 단량체, 아크릴로니트릴계 단량체, 불포화 모노카르복산계 단량체, 불포화 디카르복산계 단량체, 이들 중 하나로부터 유래된 단량체 등으로 이루어진 그룹에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다.
- [0045] 상기 제2 고분자 단량체를 중합시키는 경우, 상기 백세인 입자의 표면 상에서 상기 고분자 코어의 표면을 둘러싸는 고분자 셸이 형성될 수 있다. 상기 고분자 셸을 형성하기 위한 중합 방법은 특별히 제한되지 않는다. 예를 들면, 상기 백세인 입자 및 상기 고분자 코어가 분산된 용액에 상기 제2 고분자의 단량체를 첨가한 후 중합 개

시제를 첨가하여 상기 제2 고분자 단량체를 중합시킴으로써 상기 맥세인 입자 표면 상에서 상기 고분자 코어를 둘러싸는 상기 고분자 셸을 형성할 수 있다.

- [0046] 상기 제3 단계에 있어서, 상기 맥세인 입자 및 이의 표면에 형성된 코어셸 구조의 고분자 입자를 포함하는 복합체 입자가 분산된 용액에 염기성 용액을 첨가한 후 알칼리화반응(alkalization)을 수행함으로써 상기 코어셸 구조의 고분자 입자로부터 상기 고분자 코어 부분을 녹여낼 수 있다. 예를 들면, 상기 고분자 코어 부분을 녹여내는 경우, 상기 코어셸 구조의 고분자 입자는 내부에 중공을 구비하는 중공형 고분자 입자로 변환될 수 있고, 상기 고분자 코어 부분의 고분자 물질이 상기 용액 내에 분산될 수 있다.
- [0047] 본 발명의 일 실시예에 있어서, 상기 제3 단계 이후 상기 맥세인 입자 및 이의 표면에 형성된 중공형 고분자 입자를 포함하는 전극 합제용 복합체 바인더 재료의 분산 용액에 전극 활물질을 첨가하여 전극 형성용 페이스트 조성물을 형성할 수 있다.
- [0048] 상기 전극 활물질은 리튬 이온을 흡장 및 방출할 수 있는 음극 활물질로서, 탄소계 물질, 실리콘계 물질, 주석계 물질, 리튬 금속 등으로부터 선택된 하나 이상을 포함할 수 있다.
- [0049] 상기 탄소계 물질은 연화탄소 (soft carbon), 경화탄소 (hard carbon), 천연 흑연, 인조 흑연, 키시흑연 (Kish graphite), 열분해 탄소 (pyrolytic carbon), 액정피치계 탄소섬유 (mesophase pitch based carbon fiber), 탄소 미소구체 (mesocarbon microbeads), 액정피치 (Mesophase pitches), 석유와 석탄계 코크스 (petroleum or coal tar pitch derived cokes) 등으로부터 선택된 하나 이상을 포함할 수 있다.
- [0050] 상기 실리콘계 물질 또는 주석계 물질은 실리콘, 실리콘 산화물, 주석, 주석 산화물, 실리콘 합금, 주석 합금, 실리콘-주석 합금, 실리콘/흑연 복합체, 주석/흑연 복합체 등을 포함할 수 있다. 한편, 상기 실리콘 합금 및 주석 합금은 실리콘 또는 주석 원소와 알루미늄(Al), 망간(Mn), 철(Fe), 티타늄(Ti) 등의 고용체, 금속간 화합물, 공정합금 등을 들 수 있지만, 이들에 한정되는 것은 아니다.
- [0051] 일 실시예에 있어서, 상기 전극 형성용 페이스트 조성물을 형성하기 위해, 상기 전극 활물질과 함께 도전제를 더 첨가할 수 있다.
- [0052] 상기 도전제로는 화학적 변화를 유발하지 않으면서 상기 음극 전극의 도전성을 더욱 향상시키기 위한 성분으로서, 당업계에서 일반적으로 사용될 수 있는 것이라면 특별히 제한되지 않는다. 예를 들면, 상기 도전제는 인조 흑연, 천연 흑연, 카본 블랙, 아세틸렌 블랙, 케첸 블랙, 덴카 블랙, 씨멀 블랙, 채널 블랙, 탄소 섬유, 금속 섬유, 알루미늄, 주석, 비스무트, 실리콘, 안티몬, 니켈, 구리, 티타늄, 바나듐, 크롬, 망간, 철, 코발트, 아연, 몰리브덴, 텅스텐, 은, 금, 란타늄, 루테튬, 백금, 이리듐, 산화티탄, 폴리아닐린, 폴리티오펜, 폴리아세틸렌, 폴리피롤 등으로부터 선택된 하나 이상을 포함할 수 있다.
- [0053] 본 발명의 전극 형성용 페이스트 조성물에 따르면, 상기 전극 합제용 복합체 바인더 재료의 분산 용액은 알칼리화반응을 통해 상기 고분자 코어 부분으로부터 생성된 고분자 물질을 포함하므로, 별도의 증점제(Thickener) 등을 추가로 첨가하지 않더라도 요구되는 점도를 가질 수 있을 뿐만 아니라 우수한 접착 특성을 가질 수 있다. 또한, 상기 고분자 코어 부분을 형성하기 위한 고분자 재료를 고분자전해질 특성이 있는 재료로 사용하는 경우, 상기 전극 형성용 페이스트 조성물로 형성된 전극은 현저하게 향상된 이온 전도도를 가질 수 있다.
- [0055] 한편, 본 발명의 실시예에 따른 전극 합제용 복합체 바인더 재료는 리튬이차전지, 슈퍼 커패시터 등의 에너지 저장 소자의 전극에 적용되어 전극 활물질을 서로 결합시키고, 결합된 전극 활물질들은 집전판에 접촉시키는 기능을 수행하는 바인더 소재로서, 맥세인(MXene) 입자들 및 상기 맥세인 입자들 표면에서 중합된 고분자 재료를 포함할 수 있고, 상기 고분자 재료는 내부에 중공을 구비하는 중공 구조를 가질 수 있다.
- [0056] 상기 맥세인 입자들은 매우 얇은 2차원 나노시트의 구조를 가지고, 표면에 다양한 작용기를 가지므로, 상기 고분자 재료와의 혼화성이 매우 우수하고, 상기 맥세인 입자들과 상기 고분자 재료의 복합체 소재는 매우 강한 인장 강도를 가질 수 있다. 따라서, 본 발명의 전극 합제용 복합체 바인더 재료를 음극 활물질을 결합시키는 음극 전극 합제용 바인더 재료로 사용하는 경우, 음극 활물질로 충방전시 체적 변화가 큰 실리콘, 주석계 물질이 사용되는 경우라도 상기 음극 활물질 사이의 결합 및 상기 음극 활물질과 상기 집전체 사이의 결합을 장기간 안정적으로 유지시킬 수 있어서, 상기 에너지 저장 장치의 효율 저하를 방지하고 수명을 향상시킬 수 있다.
- [0057] 상기 고분자 재료는 상기 맥세인 입자들의 표면에 결합될 수 있고, 내부에 중공이 형성된 입자 형태를 가질 수

있다. 일 실시예로, 상기 고분자 재료는 약 80 내지 600 nm의 크기를 갖는 중공형 입자 구조를 가질 수 있다.

- [0058] 일 실시예에 있어서, 상기 고분자 재료는 에틸렌계 단량체, 아미드계 단량체, 카르복산계 단량체, (메타)아크릴 산 에스테르계 단량체, 이들 중 하나로부터 유래된 반복 단위 등으로 이루어진 그룹에서 선택된 1종 이상의 중합체를 포함할 수 있다. 예를 들면, 상기 고분자 재료는 부틸아크릴레이트계 단량체, 스티렌계 단량체, 아크릴로니트릴계 단량체, 불포화 모노카르복산계 단량체, 불포화 디카르복산계 단량체, 이들 중 하나로부터 유래된 단량체 등으로 이루어진 그룹에서 선택된 1종 이상의 중합체를 포함할 수 있다.
- [0059] 일 실시예에 있어서, 상기 전극 합제용 복합체 바인더 재료는 상기 고분자 재료 100 중량부를 기준으로 상기 맥세인 입자를 약 0.5 내지 5.0 중량부 포함할 수 있다. 상기 맥세인 입자의 비율이 0.5 중량부 미만인 경우에는, 전극 합제용 복합체 바인더 재료의 전기전도도가 요구되는 성능에 도달하지 못할 뿐만 아니라, 상기 고분자 재료를 형성하기 위한 중합 반응을 충분히 유도할 수 없는 문제점이 발생할 수 있고, 상기 맥세인 입자의 비율이 5.0 중량부를 초과하는 경우에는, 상기 맥세인 입자들 또는 이의 표면에 결합된 고분자 재료의 응집이 발생하여 전극 합제용 복합체 바인더 재료의 기계적 특성 및 접착력이 저하될 수 있을 뿐만 아니라 맥세인 입자들에 의한 고분자 재료의 경화에 의해 고분자 재료의 유리전이온도(glass transfer temperature)가 상승됨으로써 전해질 분자가 고분자 재료를 투과하는 것을 방해하는 문제점이 발생할 수 있다. 일 실시예로, 상기 전극 합제용 복합체 바인더 재료는 상기 고분자 재료 100 중량부를 기준으로 상기 맥세인 입자를 약 0.8 내지 1.5 중량부 포함할 수 있다.
- [0060] 본 발명의 전극 합제용 복합체 바인더 재료는 2차원 시트 구조의 맥세인 입자를 포함하므로 향상된 전기전도도를 가질 수 있고, 그 결과 이를 전극 합제용 바인더 재료로 적용한 에너지 저장 장치의 충방전 시간을 감소시킬 수 있다.
- [0061] 또한, 본 발명의 전극 합제용 복합체 바인더 재료는 상기 맥세인 입자의 표면에서 중합되어 형성되고 내부에 중공이 형성된 입자 형태의 고분자 재료를 포함하므로, 전해질 분자가 중공 내부에 침투될 수 있고, 그 결과 현저하게 향상된 이온 전도도를 가질 수 있다. 그리고 상기 중공 입자 형태의 고분자 재료로 인해, 우수한 접착 특성을 가질 수 있다.
- [0062] 한편, 본 발명의 실시예에 따른 에너지 저장 장치용 전극 구조체는 집전체 및 활물질 코팅층을 포함할 수 있다.
- [0063] 상기 집전체는 전지의 화학적 변화를 유발하지 않으면서 도전성을 가진 재료로 형성될 수 있다. 예를 들면, 상기 집전체는 구리, 스테인리스 스틸, 알루미늄, 니켈, 티탄, 소성 탄소, 니켈, 티탄, 은 등으로 형성되거나 알루미늄-카드뮴 합금 등으로 형성될 수 있다. 상기 집전체는 약 3 내지 500  $\mu\text{m}$ 의 두께를 가질 수 있다.
- [0064] 상기 활물질 코팅층은 상기 전극 형성용 페이스트 조성물을 상기 집전체의 일면에 도포한 후 경화하여 형성될 수 있다. 상기 활물질 코팅층에서 생성된 전자는 상기 집전체로 이동할 수 있다.
- [0066] 이하, 본 발명을 실시예에 대해 상술한다. 다만, 하기 실시예는 본 발명의 일부 실시 형태에 불과한 것으로서, 본 발명의 범위가 이들 실시예에 한정되는 것은 아니다.
- [0068] [실시예 1]
- [0069] 초순수(DDI water) 100g에 MMA(methyl methacrylate) 5.5g, BA(butyl acrylate) 6.5g, MAA(Methacrylic acid) 0.56g, SDBS(Sodium Dodecyl Benzen Sulfonate) 0.56g 및 APS(Ammonium persulfate) 1g이 첨가된 용액을 80℃로 가열된 물 400g에 첨가하여 2시간 동안 중합반응시켜 시드(seed)를 형성하였다.
- [0070] 이어서, 형성된 시드 50g을 초순수 150g에 첨가한 후 80℃까지 가열하였고, 그 후 초순수 100g에 MMA 23g, MAA 10g, SDBS 0.099g 및 APS 0.562g이 첨가된 용액을 상기 시드 함유 용액에 첨가하여 2시간 동안 반응시킴으로써 고분자 코어를 형성하였다.
- [0071] 이어서 초순수 150g에  $\text{Ti}_3\text{C}_2$  입자 1g 및 상기 고분자 코어 130g을 첨가한 후 75℃까지 가열하였고, 그 후 St(styrene) 30g, AN(acrylonitrile) 10g, BA 60g 및 DVB(Divinylbenzene) 1g을 첨가한 후 2.5시간 동안 반응시켜 상기 맥세인 입자 표면 상에 결합된 코어셀 구조의 고분자 입자를 형성하였다.
- [0072] 이어서, 15wt%의 NaOH 용액 5g을 첨가한 후 80℃의 온도에서 3시간 동안 알킬레이션 반응을 수행하여 상기 고분

자 입자로부터 코어 부분을 녹여 내어 복합체 입자를 제조하였다.

[실시예 2]

멕세인 입자로  $Ti_2C$ 를 사용한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일하게 복합체 입자를 제조하였다.

[실험예 1]

도 2a는 중공형 코어셸 고분자에 대한 SEM 이미지 및 TEM 이미지를 각각 나타내고, 도 2b는 중공형 고분자 입자 단독(HCS), 실시예 1에 따라 제조된 복합체 입자(MX1/HCS) 및 실시예 2에 따라 제조된 복합체 입자(MX2/HCS)에 대한 라만 스펙트럼을 나타내며, 도 2c는 중공형 고분자 입자 단독(HCS), 실시예 1에 따라 제조된 복합체 입자(MX1/HCS) 및 실시예 2에 따라 제조된 복합체 입자(MX2/HCS)에 대한 FT-IR 스펙트럼을 나타낸다.

도 2a 내지 도 2c를 참조하면, 상기 중공형 고분자 입자는 약 400nm의 크기를 갖고, 내부에 중공이 형성되었음을 확인할 수 있다.

그리고 멕세인 입자와 중공형 고분자 입자 사이에 화학적 결합이 형성되었음을 확인할 수 있다.

도 3은 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)를 바인더 물질로 적용하여 제조된 바인더 필름들 상에 적하된 전해질 액적의 60초 동안의 접촉각 변화를 측정한 그래프이고, 하기 표 1은 6시간 동안 상기 바인더 필름들의 전해질 흡수율을 측정한 결과를 나타낸다.

표 1

|                       | SBR   | HCS  | MX1/HCS | MX2/HCS |
|-----------------------|-------|------|---------|---------|
| Electolyte uptake (%) | 29.12 | 30.5 | 29.9    | 31.9    |

도 3 및 표 1을 참조하면, 전해질 액적의 적하 후 60초 동안에 실시예 1 및 2의 복합체 재료를 바인더 물질로 적용한 필름들은 상용 SBR 바인더를 적용한 필름에 비해 접촉각이 크게 유지됨에 반해 6시간 경과 후의 전해질 흡수율은 더 높은 것으로 나타났다.

도 4는 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)를 바인더 물질로 적용하여 제조된 바인더 필름들에 대해 측정된 TGA(Thermogravimetry) 분석 결과를 나타낸다.

도 4를 참조하면, 모든 바인더 필름들은 약 300℃ 이상의 온도에서 중량 손실이 급격히 발생하는 것으로 나타났고, 이는 실시예 1, 2의 바인더 필름에서 300℃ 이하의 온도에서는 멕세인 입자가 중공형 고분자 입자의 안정성에 변화를 주지 않음을 나타낸다.

도 5는 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)를 바인더 물질로 적용하여 제조된 바인더 필름들에 대해 측정된 이온 전도도를 나타내는 그래프이다.

도 5를 참조하면, 비중공형인 SBR 바인더가 적용된 바인더 필름(SBR)에 비해 중공형 고분자 입자를 포함하는 바인더 필름들(HCS, MX1/HCS, MX2/HCS)이 현저하게 높은 이온 전도도를 갖는 것으로 나타났다. 특히, 실시예 1, 2의 복합체 바인더 재료가 적용된 바인더 필름들(MX1/HCS, MX2/HCS)이 중공형 고분자 입자 단독의 바인더 재료가 적용된 바인더 필름(HCS)보다 더 높은 이온 전도도를 갖는 것으로 나타났다.

[0093] 도 6a 및 도 6b는 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)를 바인더 물질로 적용한 슈퍼커패시터 전극의 질소 흡착/탈착 등은 곡선 및 전극의 포어 직경의 분포를 나타내는 그래프들이고, 하기 표 2는 도 6b에 도시된 전극의 포어 직경의 분포를 측정된 결과를 나타낸다.

표 2

|         | $S_{BET}$<br>( $m^2 g^{-1}$ ) | $S_{micro}$<br>( $m^2 g^{-1}$ ) | $S_{meso}$<br>( $m^2 g^{-1}$ ) | $V_{total\ pore}$<br>( $cm^3 g^{-1}$ ) | Pore width aver<br>(nm) |
|---------|-------------------------------|---------------------------------|--------------------------------|----------------------------------------|-------------------------|
| SBR     | 1193.51                       | 943.85                          | 258.66                         | 0.61                                   | 2.06                    |
| HCS     | 1168.50                       | 907.42                          | 261.09                         | 0.60                                   | 2.06                    |
| MX1/HCS | 1154.69                       | 901.04                          | 253.65                         | 0.60                                   | 2.06                    |
| MX2/HCS | 1140.01                       | 880.58                          | 259.43                         | 0.56                                   | 1.96                    |

[0095] 도 6a, 도 6b 및 표 2를 참조하면, SBR 바인더가 적용된 전극에 비해 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)가 바인더로 적용된 전극들이 더 작은 비표면적을 갖는 것으로 나타났으나, 모든 전극들은 H4 히스테리시스 루프를 갖는 타입 IV와 결합된 타입 I의 등온 곡선을 나타내었고, 포어 크기 분포에서 어떠한 차이점도 발견되지 않았다. 이로부터 실시예 1, 2의 복합체 재료가 바인더로 적용된 전극은 더 작은 비표면적을 가질 수 있으나, 고분자가 포어를 막는 블록킹 효과는 심각하지 않음을 알 수 있다.

[0097] 도 7a는 알루미늄 포일 상에 형성되고 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)를 각각 포함하는 바인더 필름들에 대해 측정된 CV(Cyclic voltammetry) 결과를 나타내는 그래프들이고, 도 7b는 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)가 각각 바인더로 적용된 EDLCs(Electric Double Layer Capacitors)에 대해 측정된 CV 결과를 나타내는 그래프들이다.

[0098] 도 7a를 참조하면, 모든 대칭 셀들에서 어떠한 산화환원 피크가 없는 작은 전류 응답을 나타내었고, 이는 백세인의 존재에 관계없이 측정 전압 영역에서 바인더 필름에는 어떠한 산화환원 반응이 일어나지 않음을 나타낸다.

[0099] 도 7b를 참조하면, 모든 EDLC 셀들에서 뚜렷한 산화환원 피크가 없는 전기 이중층 특성이 나타났고, 이는 백세인을 함유하는 바인더도 에너지 저장 시스템의 작동 전압 영역에서 전기화학적으로 안정하다는 것을 나타낸다.

[0101] 도 8은 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)를 적용한 EDLC 셀들에 대해 측정된 나이퀴스트 플롯(Nyquist plot)을 나타낸다.

[0102] 도 8을 참조하면, 중공형 고분자 단독(HCS)의 바인더가 적용된 EDLC 셀에 비해 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)를 적용한 EDLC 셀들이 더 작은 저항값을 갖는 것을 확인할 수 있다.

[0104] 도 9a는 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)가 각각 바인더로 적용된 EDLCs(Electric Double Layer Capacitors)에 대해 2.7 내지 1.35V의 전압 영역에서 측정된 방전 사이클에 따른 방전 용량의 변화를 나타내는 그래프이고, 도 9b는 SBR(styrene-butadiene rubber), 중공형 고분자 단독(HCS), 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)가 각각 바인더로 적용된 EDLCs(Electric Double Layer Capacitors)에 대해 다양한 전류 밀도(0.5, 1.05, 5.0, 10.0, 50.0 mA/cm<sup>2</sup>)에서 측정된 방전 사이클에 따른 방전 용량의 변화를 나타내는 그래프이다.

[0105] 도 9a 및 도 9b를 참조하면, 실시예 1의 복합체 재료(MX1/HCS) 및 실시예 2의 복합체 재료(MX2/HCS)가 각각 바

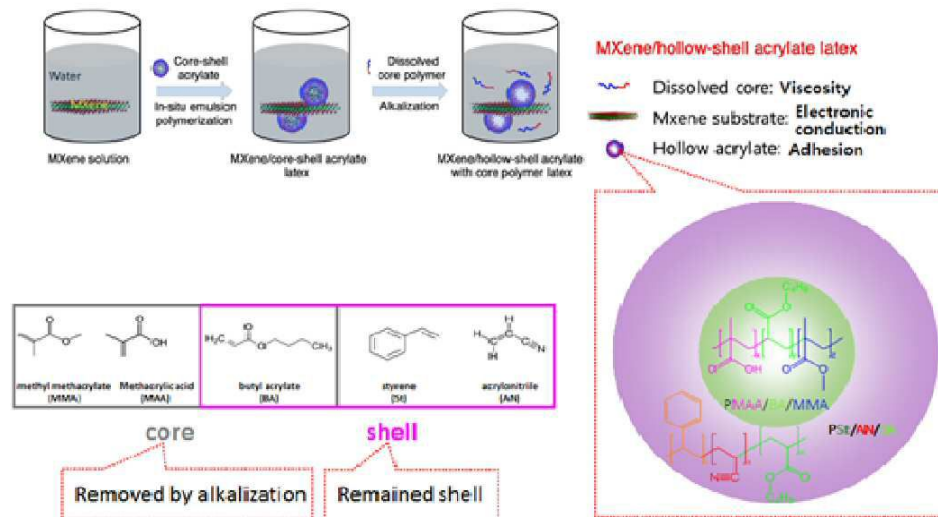
인더로 적용된 EDLC 셀들은 SBR(styrene-butadiene rubber)이 바인더로 적용된 EDLC 셀보다 모든 조건에서 현저하게 높은 방전 용량을 가짐을 확인할 수 있다.

## 부호의 설명

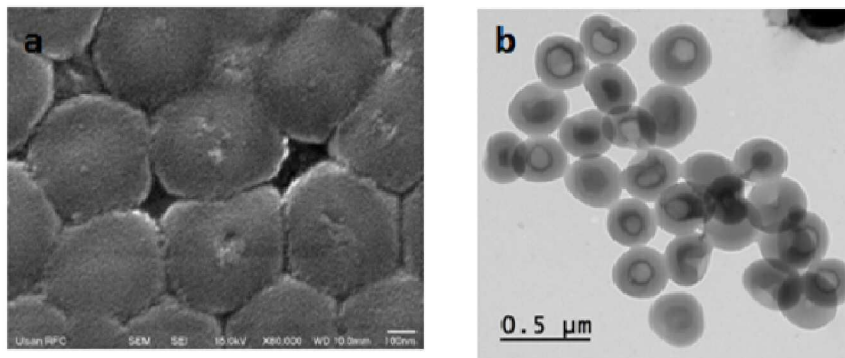
없음

## 도면

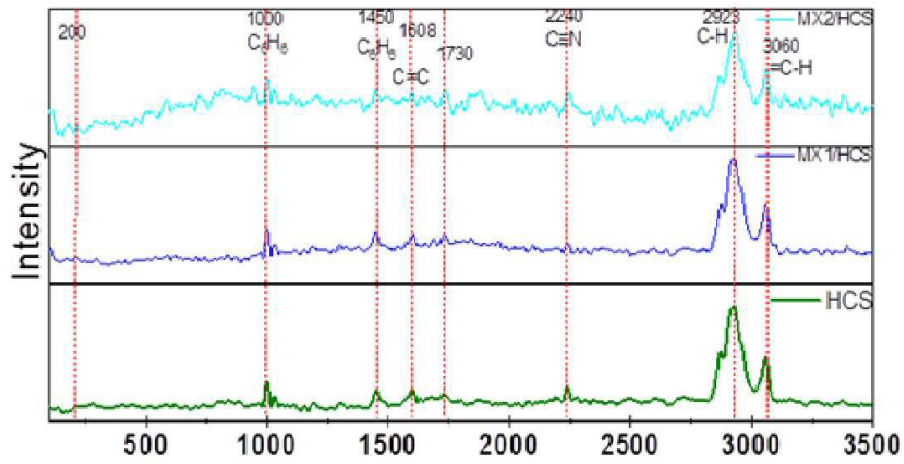
### 도면1



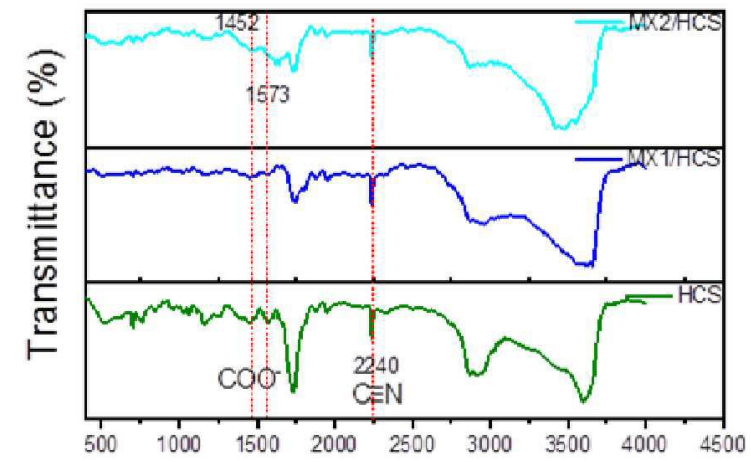
### 도면2a



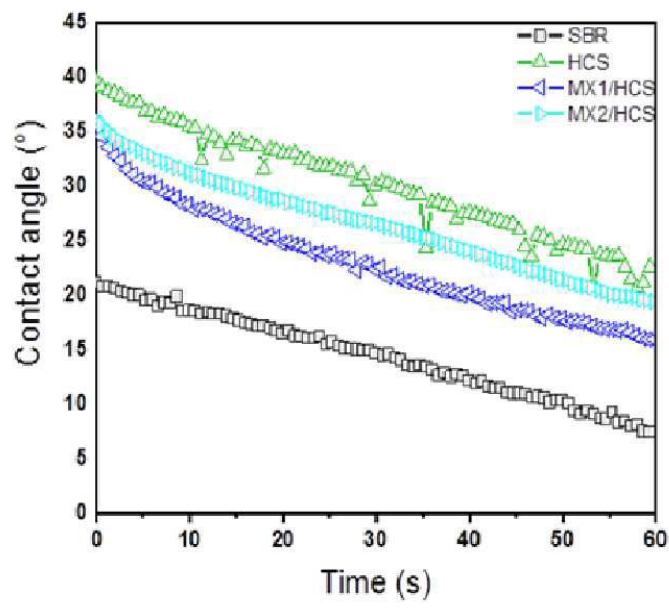
도면2b



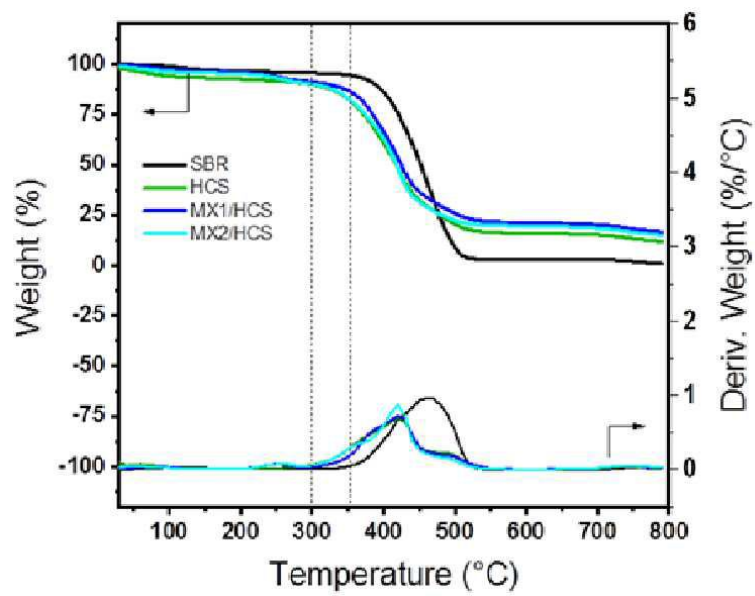
도면2c



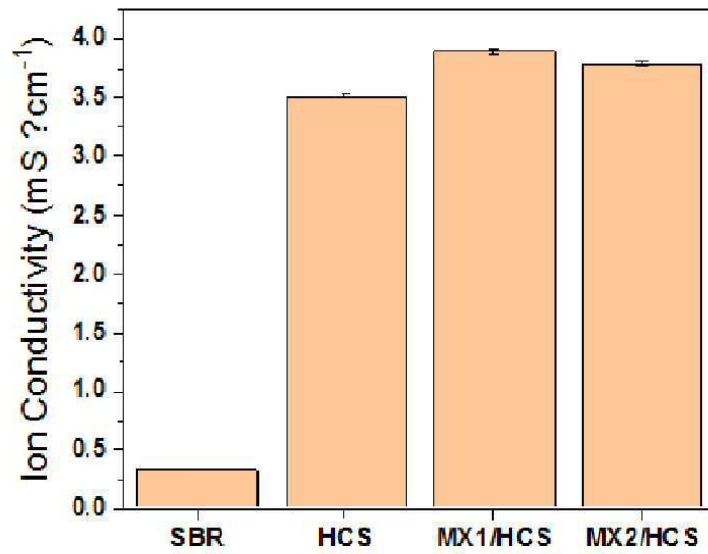
도면3



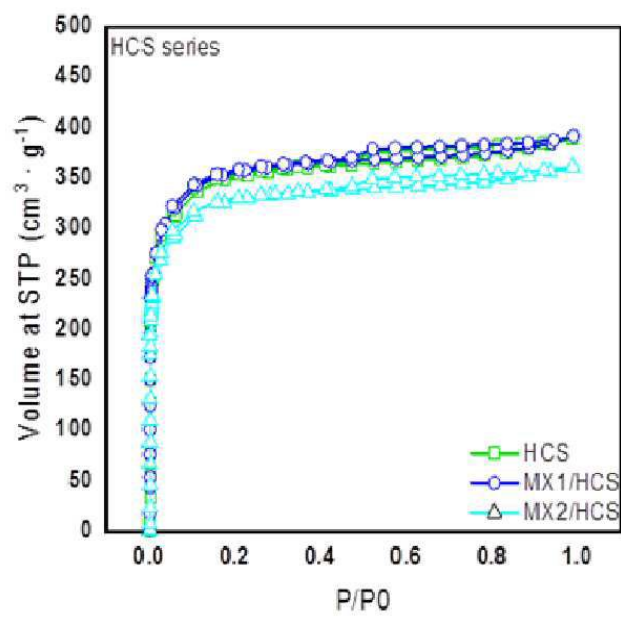
도면4



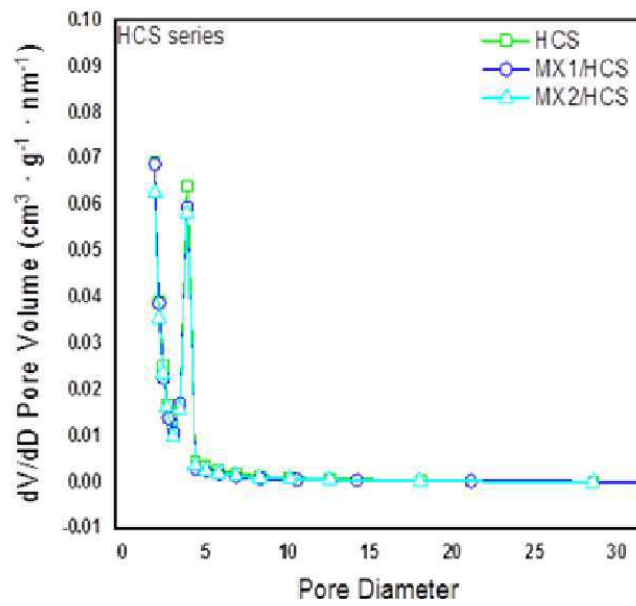
도면5



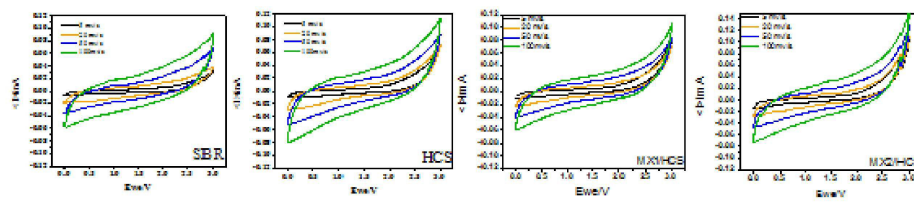
도면6a



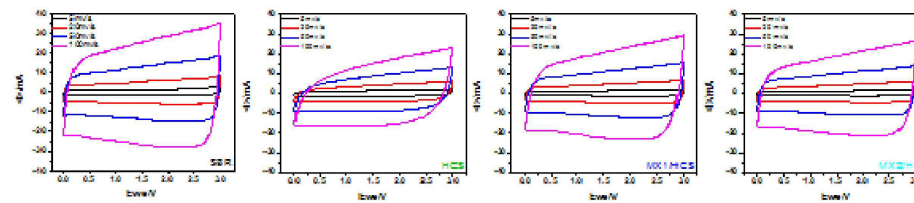
도면6b



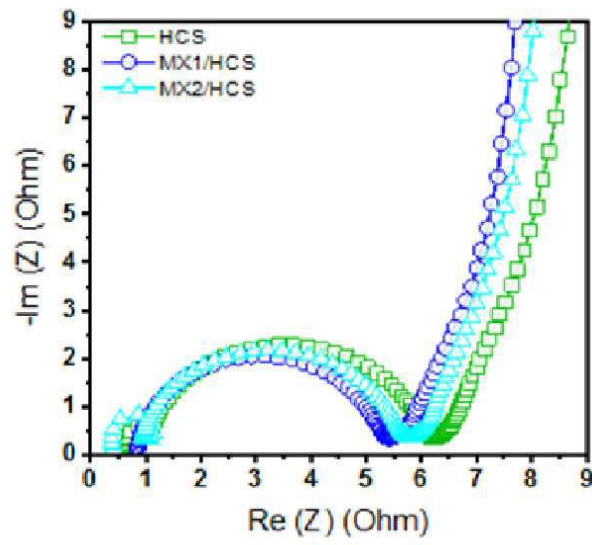
도면7a



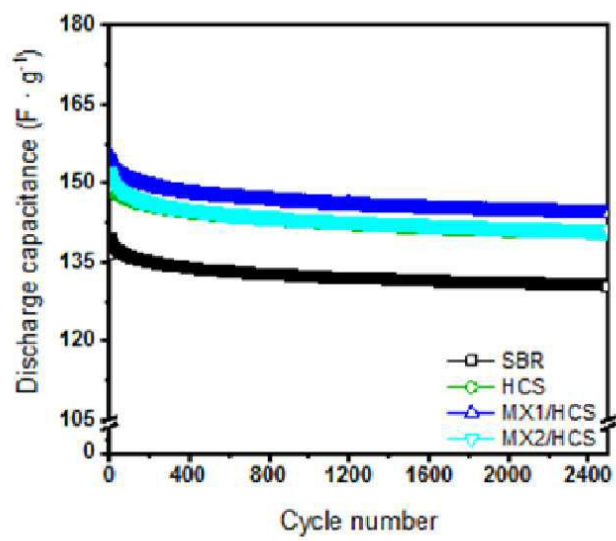
도면7b



도면8



도면9a



도면9b

