



리튬 이차전지 건식 전극의 성능 향상을 위한 기계적 고전단 혼합을 통한 전극 분말 전처리 공정 최적화

Optimization of Electrode Powder Pre-treatment via Mechanical High-shear Mixing for Enhanced Performance of Dry Electrodes in Lithium Batteries

박민준¹, 양민규¹, 온민석¹, 이재학², 석재영^{1,*}

Minjun Park¹, Minkyu Yang¹, Minseok On¹, Jaehak Lee², and Jae Young Seok^{1,*}

¹ 서울과학기술대학교 기계시스템공학부 (School of Mechanical Systems Engineering, Seoul National University of Science and Technology)

² 한국생산기술연구원 자율형제조연구부 (Autonomous Manufacturing and Process R&D Department, Korea Institute of Industrial Technology)

Corresponding Author / E-mail: seokjy@seoultech.ac.kr, TEL: +82-2-970-6325

ORCID: 0000-0003-4000-579X

KEYWORDS: Lithium-ion batteries (리튬-이온 전지), Dry electrodes (건식 전극), High-shear mixing (고전단 혼합), PTFE fibrillation (PTFE 섬유화), Process optimization (공정 최적화)

Dry electrode fabrication is considered a crucial next-generation process for secondary batteries because it eliminates the need for solvents and drying steps, significantly reducing energy consumption and carbon emissions. To achieve optimal performance in dry electrodes, it is essential to ensure high mechanical stability and electrical conductivity. These properties can be enhanced by controlling binder fibrillation and creating a continuous conductive network through the uniform dispersion of conductive additives. In this study, we applied mechanical shear mixing as a pre-treatment to electrode powders, which included active materials, conductive agents, and binders. We systematically investigated variations in electrical conductivity, binding structure, tensile properties, internal resistance (via IR drop), and fast-charging performance as a function of the mixing shear rate. In particular, we quantified the binder fibrillation behavior and the dispersion of conductive agents that occur simultaneously during mixing. By correlating these factors with the physical and electrochemical properties of the final electrode film, we propose design guidelines to optimize the mixing pre-treatment process.

Manuscript received: February 5, 2026 / Revised: February 11, 2026 / Accepted: February 18, 2026

1. 서론

전기자동차(Electric Vehicle, EV)의 주행거리 연장과 대형 에너지 저장 시스템(Energy Storage System, ESS)의 수요 증대에 따라, 리튬-이온 전지(Lithium-ion Battery, LIB)의 에너지 밀도를 획기적으로 향상시키기 위한 연구가 주요 과제로 대두되고 있다. 이를 달성하기 위한 효율적인 전략 중 하나는 셀 내 비활성 부품인 집전체와 분리막의 비율을 최소화하고 활물질 층의 두께를 증가시키는 후막 전극(Thick Electrode) 설계를 도입하는

것이다[1,2].

그러나 기존의 용매 기반 습식 코팅(Solvent-based Wet Coating) 공정은 전극 두께가 증가할수록 건조 과정에서 용매 증발에 따른 바인더 마이그레이션(Binder Migration) 현상이 심화되는 고질적인 문제에 직면한다[3,4]. 이는 전극 두께 방향으로 불균일한 바인더 분포를 초래하여 기계적 박리를 유발하고 전기적 네트워크를 약화시킨다. 또한, 유독성 용매인 N-methyl-2-pyrrolidone (NMP)의 사용과 이를 건조 및 회수하는 공정은 전체 전극 제조 에너지의 상당 부분을 차지하며 환경적,

비용적 부담을 가중시키고 있다[5,6].

이러한 습식 공정의 한계를 극복하기 위해, 용매를 완전히 배제한 건식 전극(Solvent-free Dry Electrode) 제조 기술이 차세대 친환경 공정으로 각광받고 있다[7]. 건식 공정은 용매 제거 단계를 생략함으로써 공정 효율성을 극대화할 뿐 아니라, 마이그레이션 현상을 원천적으로 방지하여 후막 전극에서도 균일한 미세구조와 우수한 전기화학적 성능을 구현할 수 있는 잠재력을 갖는다[8,9]. 건식 전극 공정의 핵심은 Poly-(tetrafluoroethylene) (PTFE) 바인더의 전단에 의한 섬유화(Fibrillation) 현상을 활용하는 데 있다. 기계적 전단력을 받으면 PTFE 바인더는 미세 섬유 형태로 변화하며, 전극 활물질과 도전재 입자를 물리적으로 포획하고 상호 간 결속시키는 매트릭스 역할을 수행한다. 전극의 기계적 강도 확보와 내부의 유기적 전도성 네트워크 형성에 결정적인 역할을 하는 것이다.

고품질 건식 전극의 제조를 위해서는 전극 필름 성형(Film Formation) 단계에 앞서, 핵심 원료(활물질, 도전재, 바인더) 분말을 균일하게 분산 및 혼합하고 바인더를 적절히 섬유화하는 전처리(Pre-treatment) 공정이 중요하다. 선행 연구에서는 주로 막자사발을 이용한 수작업(Mortar Grinding)[10], 볼-밀(Ball-mill)[11], 제트-밀(Jet-mill)[12], 반죽기(Kneader)[8], 또는 스크류 압출기(Screw Extruder)[13] 등을 활용하여 재료에 전단력을 인가해왔으나, 이러한 방식들은 인가되는 전단 에너지(Shear Energy)를 정량적으로 제어하기 어렵다는 한계가 있었다. 부족한 전단력은 불충분한 섬유화로 인해 전극의 기계적 안정성을 저하시켜 필름 성형 불량률에 야기하는 반면, 과도한 전단력은 PTFE 섬유의 절단, 그리고 활물질과 도전재의 과도한 응집(Aggregation)을 유발하여 전극 임피던스를 증가시키는 요인으로 작용한다[14]. 이러한 측면에서 최적의 전극 물성을 확보하기 위해서는 전단력과 전극 미세구조 간의 상관관계를 규명하고, 이를 바탕으로 한 정밀한 분말 전처리 공정 제어 기술의 확립이 시급한 것이다.

본 연구에서는 기계적 전단율을 제어할 수 있는 고속전단 혼합장치(High-speed Shear Mixer)를 도입하여, 건식 전극 제조를 위한 분말 전처리 최적 프로토콜을 제안한다. 구체적으로, 활물질, 도전재, PTFE 바인더로 구성된 재료에 대하여 혼합 시간은 고정된 채, 인가되는 전단율(Shear Rate)을 제어 변수로 바인더의 섬유화 정도와 도전재의 분산도를 최적화하였다. 이때, 고전단 혼합을 통해 전처리된 혼합 분말은 이후 가열된 2-롤 밀(2-Roll Mill) 공정을 거쳐 균일한 두께를 갖는 전극 필름으로 제조된 후 평가되었다.

기존의 혼합 방식과 달리, 전단율이라는 정량적 지표를 기반으로 공정 조건을 제어함으로써 전극 필름 제조에 가장 적합한 물성을 탐색한다는 점이 특징이다. 우선 구조적 측면에서는 주사전자현미경(Scanning Electron Microscopy, SEM)을 활용하여 전단율 변화에 따른 PTFE 바인더의 섬유화 형상과 전극 합제 내 구성 요소들의 분산 상태를 시각적으로 관찰하였고, 기계적 물성 평가를 위해 마이크로 인장 시험을 도입하여 전극 필름의

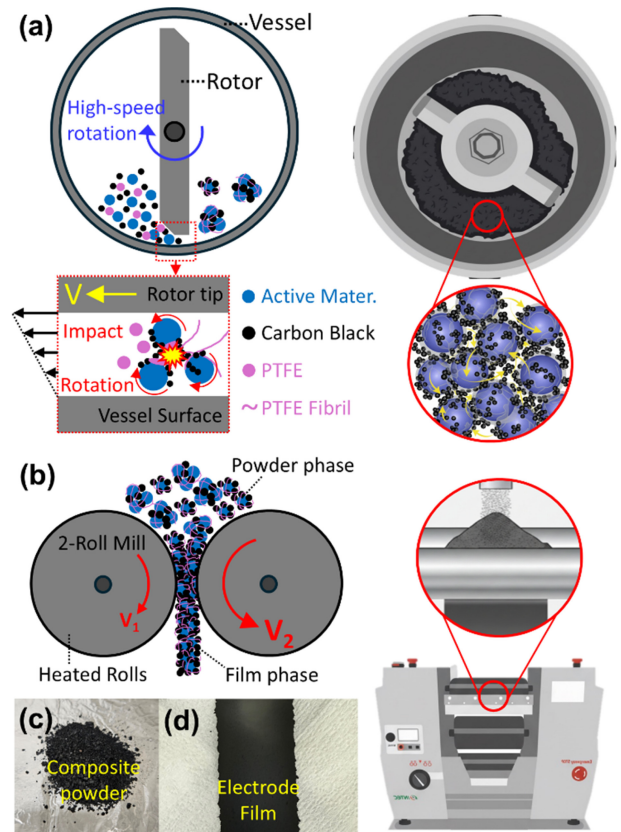


Fig. 1 Schematics of the dry electrode fabrication process. (a) High-shear pre-treatment inducing PTFE fibrillation and carbon dispersion, (b) Electrode film formation using a heated 2-roll mill. Optical images of (c) the composite powder and (d) the fabricated electrode film

강도 및 유연성을 평가하며, 더 나아가 전기화학적 성능 평가를 위해 0.1에서 0.3 C에 이르는 다양한 충전속도(C-rate) 조건에서의 충-방전 특성을 계측하여 셀의 전기화학적 내부저항까지 확인함으로써, 전단 공정 조건이 최종적으로 도출되는 전극 필름의 전기화학적 성능에 미치는 영향까지 검증하였다. 이를 통해, 전단율 변화가 전극 물성에 미치는 영향을 다각도에서 종합적으로 규명할 수 있었으며, 이와 같은 전단율에 따른 건식 전극 분말의 전처리 공정 최적화는 향후 건식 전극의 대량생산 시스템 구축에 있어 공정 설계 및 품질 관리를 위한 핵심적인 가이드라인을 제공할 것으로 기대된다.

2. 실험 방법

2.1 사용 재료

본 연구에서 전극 제조를 위한 양극 활물질로는 NCM622 (Dia.: 5–15 μm , MTI Co.)를 사용하였으며, 도전재로는 카본 블랙(Timcal C65, Dia.: 20–50 nm, MTI Co.) 및 다중벽 탄소 나노튜브(MWCNT, MR99, (주)카본나노텍)를, 바인더로는 PTFE 분말(Teflon™ PTFE 601X, Chemours Co. FC LLC)을 사용하였다.

전기화학적 성능 평가는 CR2032 규격의 코인 셀을 조립하여 수행하였다. 셀 조립 시 분리막은 Celgard 2400 제품을, 상대 전극(Counter Electrode)은 리튬 금속(Lithium Metal, Purity $\geq$ 99.9%, MTI Co.)을 사용하였으며, 전해질은 1 M LiPF₆ in EC/DEC (1/1 v/v)에 FEC 10wt%가 첨가된 제품(쥬엔켄)을 적용하였다. 상기 모든 재료는 별도의 추가 정제 과정 없이 구입 상태 그대로 사용하였다.

2.2 전극 제조 공정

건식 전극 제조는 고속전단 혼합 전처리(High-shear Mixing Pre-treatment, Fig. 1(a))와 2-롤 밀(Fig. 1(b))의 두 단계 공정을 통해 순차적으로 수행되었다. 먼저, 전극 제조를 위해 양극 활물질 분말(NCM622 (90 wt%)), 도전재 분말(Timcal C65 (4.5 wt%) 및 MWCNT (0.5 wt%)), 그리고 바인더 분말(PTFE 601X (5 wt%))를 고속전단 혼합기에 투입한다. 고속전단혼합기의 회전속도(RPM)를 각 공정 조건에 맞춰 제어한 후, 1,000초 동안 혼합 전처리 공정을 진행하였으며, 이를 통해 응집된 도전재 분말의 균일한 분산(Dispersion)과 PTFE 바인더 분말의 섬유화를 유도하여 구성 입자 간의 일차적인 결합을 형성할 수 있다. 이후, 전처리된 복합 분말(Fig. 1(c))을 80°C로 예열된 2-롤 밀 장치에 투입한다. 이때, 두 개의 롤은 0.1 mm의 간극을 유지하며 각각 3과 3.6 RPM의 상이한 속도로 회전하도록 설정되는데, 롤 간의 속도 차이에 의해 투입된 분말은 비벼지는 거동이 발생하며, 이로 인한 전단 응력(Shear Stress)은 PTFE 바인더의 장거리 결합을 촉진시켜, 결과적으로 기계적으로 안정한 자립형(Free-standing) 전극 필름(Fig. 1(d))이 제조될 수 있게 된다.

2.3 물성 및 성능 측정/분석

제조된 전극 필름의 미세조직 및 구조는 전극 단면의 전자주사현미경(SEM, Hitachi SU8010) 분석을 통해 수행되었다. 강도 및 연신율 등의 기계적 물성 측정을 위해 각 전극 필름은 10 × 40 mm² 크기로 재단되었으며, 마이크로 재료시험기(Micro-fatigue Tester, E3000LT, Instron Inc.)를 통해 1 mm/min 속도로 인장시험이 수행되었다. 전기전도도 측정의 경우, 동일한 크기로 재단된 전극 필름에 시편 양단에 실버 페이스트(Silver Paste)를 도포하여 전극을 형성하였다. 이후, 디지털 멀티미터(3244-60, HIOKI)를 이용해 저항(R)을 측정하였으며, 시편의 폭(W), 두께(t), 그리고 전극간 거리(L)를 기반으로 식(1)과 같이 전기전도도(σ)를 산출하였다.

$$\sigma = \frac{L}{R \cdot W \cdot t} \quad (1)$$

전기화학적 특성 분석을 위해 전극 필름을 직경 10 mm로 펀칭(Punching)한 후 CR2032 규격의 코인 셀로 조립하였다. 조립된 셀은 포텐시오스탯(Potential-stat, ZIVE MP-1, Wonatech) 및 배터리 충방전기(Battery Cycler, WBCS3000Le, Wonatech)를 활용하여 평가하였다.

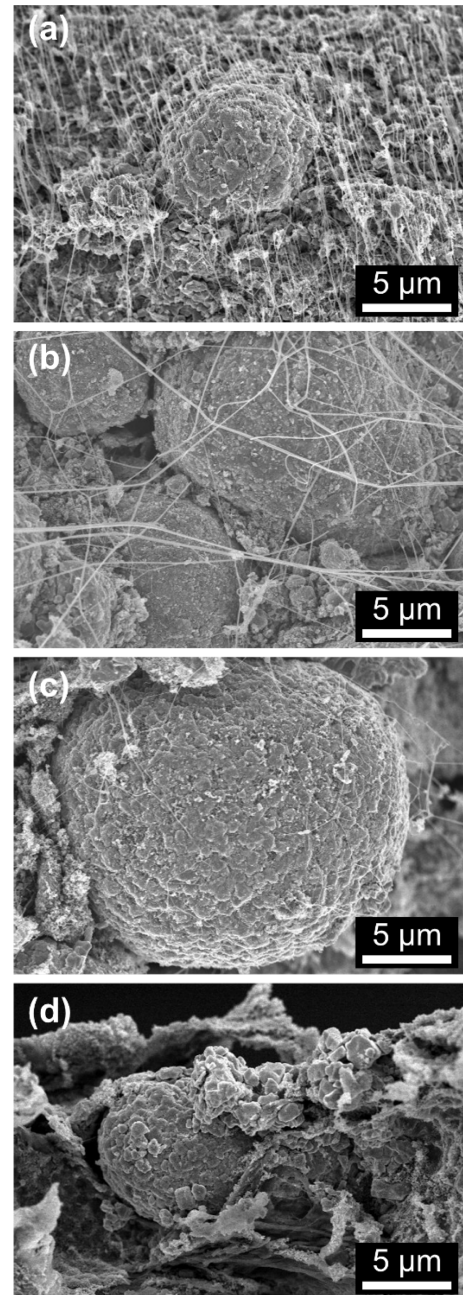


Fig. 2 Cross-sectional SEM images of dry electrodes subjected to powder pre-treatment at shear rates of (a) 1360, (b) 2720, (c) 4080, and (d) 9520 s⁻¹ (with processing time of 1,000 sec)

3. 실험 결과 및 고찰

3.1 전극의 미세구조 및 조직 분석

Fig. 2에서 고속전단 혼합 전처리 공정 중 인가된 전단율(Shear Rate) 변화에 따른 건식 전극 필름의 단면 미세구조를 보여준다. 전단율은 PTFE 바인더의 섬유화를 유도하는 핵심 인자로, 그 크기에 따라 전극 내부의 기공 구조 및 입자 간 결합 상태가 상이하게 나타남을 명확하게 확인할 수 있다. 상대적으로 낮은 전단율 조건인 1360 s⁻¹ (Fig. 2(a))와 2720 s⁻¹ (Fig. 2(b))

에서는 PTFE는 두꺼운 섬유 형태로 확인되며, 섬유화와 분말간 결합이 충분히 발현되지 못한 양상을 보인다. 이로 인해 활물질 및 도전재 입자들을 효과적으로 고정하지 못하고, 국부적으로 바인더가 뭉쳐 있거나 입자 간의 연결성이 부족한 느슨한 합제 (Loose Packing) 구조가 관찰된다. 이러한 구조는 전극의 기계적 강도 저하 및 충전-방전 과정에서의 활물질 탈리(Detachment)의 원인이 될 수 있다.

전단율이 4080 s^{-1} 로 증가함에 따라(Fig. 2(c)), PTFE 바인더가 효과적으로 섬유화되어 활물질과 도전재 입자 사이를 견고하게 연결하는 네트워크 구조가 뚜렷하게 형성됨을 확인할 수 있다. SEM 이미지 상에서 관찰되는 미세한 거미줄 형태의 PTFE 섬유(Fibril) 바인더는 활물질 입자 표면과 도전재를 전체적으로 감싸며 구조적 안정성을 유지시키는 역할을 수행한다. 이는 적절한 전단 응력(Shear Stress)이 바인더 입자에 인가되어 PTFE의 소성 변형을 극대화하고, 균일하고 매우 미세한 장거리 섬유 조직을 형성하여 제조되는 전극 전체의 구조적 건전성(Structural Integrity)을 향상시켰음을 내포한다.

한편, 가장 높은 전단율인 9520 s^{-1} 조건(Fig. 2(d))에서는 과도한 전단력으로 인해 미세구조가 현미경 사진 상에서 관찰되기 어려울 정도로 극히 치밀해지며, 과도한 전단력은 섬유의 절단도 동시에 유발한 것으로 추정된다. 특히, 과도하게 미세 섬유화된 바인더는 상대적으로 크기가 작은 도전재 재료와 결합하며 응집되어 활물질 분말과 구조적으로 분리시키는 경향을 보인다. 이는 활물질로의 비효율적인 전자 전달로 전기화학적 반응성 저하의 주요 원인이 될 위험을 내포한다. 또한, 국부적 응집에 의해 입자 간의 간격이 지나치게 좁아져 기공도가 감소하면 전해액의 함침(Infiltration)과 전해액의 리튬-이온의 이동을 방해하여 이온 전도 또한 저하시킬 우려가 있으며, 활물질 표면을 PTFE 바인더가 과도하게 피복(Covering)함에 따라 충전-방전 과정에서 전기화학적 반응의 유효 면적을 감소시킬 가능성이 존재한다.

따라서, 기계적 결합력과 전기화학적 성능의 균형을 고려할 때, 본 연구에서는 4080 s^{-1} 의 전단율이 건식 전극 제조를 위한 최적의 전처리 조건으로 판단된다. 상기 결과는 건식 분말 전처리 공정 변수인 전단율이 전극의 미세구조 제어에 지배적인 영향을 미치며, 향후 건식 전극 설계 시 반드시 고려되어야 할 핵심 설계 인자임을 보여준다.

Fig. 3은 제조된 건식 전극의 표면 형상을 보여주며, 이를 통해 전극의 거시적인 표면 균일성과 구성 입자들의 분산 상태를 확인할 수 있다. 먼저 낮은 전단율 조건인 2720 s^{-1} (Fig. 3(a))에서는 도전재 입자들이 충분히 분산되지 못하고 뭉친 응집체를 형성하고 있는 것이 관찰된다. 이는 활물질(NCM)과의 접촉 면적을 감소시키며 전기적 불균일성을 초래할 수 있다. 반면, 최적 전단율인 4080 s^{-1} (Fig. 3(b)) 조건에서는 특정 성분의 뭉침 없이 도전재와 바인더가 활물질 입자 표면을 균일하게 감싸며, 입자 사이의 공극을 촘촘하게 메우는 이상적인 전도성 네트워크를 형성하고 있음을 알 수 있다. 그러나 과도한 전단율인

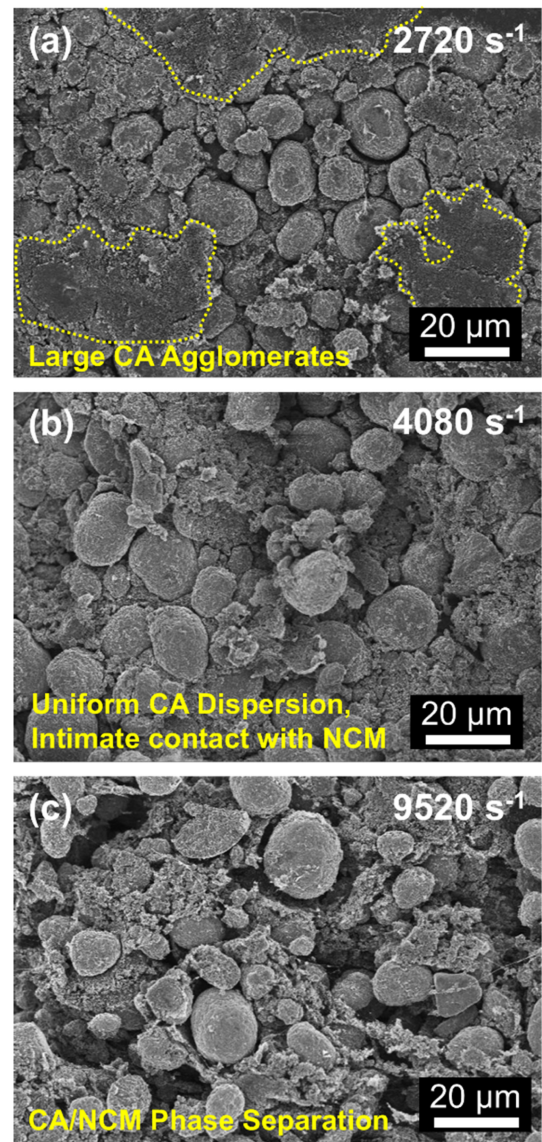


Fig. 3 Top-view SEM images of dry electrodes subjected to powder pre-treatment at shear rates of (a) 2720 s^{-1} , (b) 4080 s^{-1} , and (c) 9520 s^{-1} (with processing time of 1,000 sec)

9520 s^{-1} (Fig. 3(c)) 조건에서는 활물질과 도전재/바인더 복합체 간의 상 분리(Phase Separation) 현상이 뚜렷하게 나타난다. 과도한 에너지로 인해 바인더와 도전재가 자체적으로 응집되며 활물질 표면에서 탈리(Detachment)되었으며, 이는 충방전 시 활물질 표면으로의 효율적인 전자 전달 경로를 차단하여 전기화학적 성능 저하를 야기함을 내포한다.

3.2 전극의 기계적/전기적 물성 분석

각 전단율 전처리 조건($2720\text{--}9520\text{ s}^{-1}$)에서 각각 제작된 전극 필름의 기계적, 전기적 물성을 정량적으로 측정하여 비교하였다 (Fig. 4). Fig. 4(a)는 전처리 공정의 전단율(Shear Rate) 변화에 따른 건식 전극 필름의 응력-변형률 곡선(Stress-strain Curve)을 보여준다. 모든 조건의 전극은 파단 전까지 일정 수준의 소성

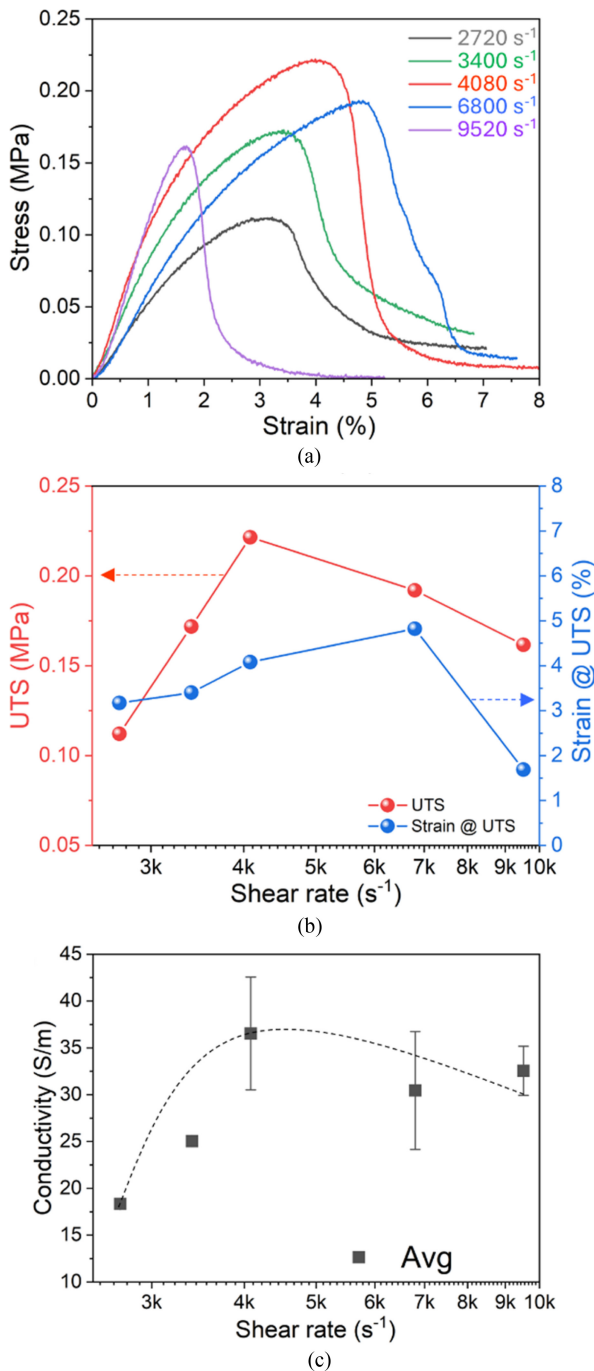


Fig. 4 Mechanical and electrical properties of dry electrode films prepared at different shear rates, (a) Stress-strain curves obtained from tensile testing, (b) Ultimate tensile strength (UTS) and strain at UTS plotted as a function of shear rate, and (c) Electronic conductivity of the electrode films

변형을 동반하는 연성(Ductile) 거동을 나타내었으나, 인가된 전단율에 따라 그 거동은 뚜렷한 차이를 보였다. 비교적 낮은 전단율(2720, 3400 s⁻¹) 조건으로 처리된 전극 필름에서는 응력과 연신율이 모두 낮은 값을 기록하며 불충분한 기계적 물성을 보인 반면, 전단율이 증가함에 인장강도와 연신율이 전반적으로 증가되며, 그래프의 면적(인성, Toughness)이 확장되는 경향이

관찰되었다. 그러나, 과도한 전단율인 9520 s⁻¹조건에서는 최대 강도와 연신율이 모두 급격히 감소하며 전극의 기계적 안정성이 심각하게 훼손됨을 확인할 수 있다.

Fig. 4(b)는 이러한 기계적 특성 변화를 최대 인장 강도(UTS)와 해당 시점의 연신율(Strain at UTS)로 정량화하여 요약한 결과이다. 우선 전극의 강도(UTS, 적색 곡선)는 전단율이 증가함에 따라 가파르게 상승하여 4080 s⁻¹ 조건에서 약 0.22 MPa의 최적 값에 도달하였다. 이는 적절한 전단력이 PTFE 바인더의 섬유화를 촉진시켜 활물질과 도전재를 견고하게 결합 시켰음을 의미한다. 하지만 4080 s⁻¹을 초과하는 고속 전단 구간에서는 강도가 점차 감소하는 경향을 보였으며, 특히 9520 s⁻¹에서는 강도가 0.16 MPa 수준으로 급락하였다. 이는 바인더 섬유의 미세화를 넘어, 바인더 섬유의 파단(Breakage) 현상과 불충분한 입자간 접합 구조 형성에 기인하는 것으로 추정된다.

다른 한편, 전극의 유연성을 나타내는 연신율(Blue Line)은 강도와는 다소 상이한 거동을 보인다. 강도는 4080 s⁻¹에서 정점을 찍고 하락한 반면, 연신율은 6800 s⁻¹ 조건까지 지속적으로 증가하여 최대 5% 수준의 변형률을 기록하였다. 이는 4080–6800 s⁻¹ 구간에서 PTFE 섬유가 길게 늘어나며 유연성은 확보되었으나, 과도한 연신으로 인해 섬유의 밀도나 결합력 자체(강도)는 다소 약화되었음을 내포한다. 그러나 역시 9520 s⁻¹의 과도한 전단율을 인가하는 조건에서는 바인더가 한계 이상으로 늘어나거나 절단되어, 결과적으로 제조되는 전극 필름의 강도와 유연성이 동시에 크게 저하되는 현상이 일관되게 관찰되었다.

마지막으로, Fig. 4(c)는 전극 필름의 전기전도도 (Electronic Conductivity) 특성 분석 결과를 나타낸다. 전기전도도는 기계적 강도와 유사한 경향성을 보이며, 4080 s⁻¹ 조건에서 가장 높은 값(약 37 S/m)을 기록함을 관찰할 수 있다. 이는 원활한 도전재 분산과 더불어, 최적화된 바인더 섬유 네트워크가 활물질과 도전재 입자 간의 접촉 저항을 최소화하고 효과적인 전자 이동 경로(Conductive Path)를 형성했기 때문으로 분석된다. 반면, 전단율이 과도한(6800–9520 s⁻¹) 경우, 점차 전기전도도가 하락하는 추세를 보인다. 이는 극심한 전단에 의해서 더욱 미세해진 바인더 섬유와 수십 nm 크기의 도전재 입자의 상호간의 응집이 유발되며, 장거리(Long-range) 전도 경로가 국부적으로 단절되어, 필름 전체를 아우르는 전체적인 전도성이 저하되는 것으로 추정된다.

3.3 전극의 전기화학적 성능 평가

본 연구에서는 전단 속도(Shear Rate)가 건식 전극의 물리적 특성과 전기화학적 성능에 미치는 영향을 분석하기 위해, 서로 다른 전단 속도(저속(2720 s⁻¹), 중속(4080 s⁻¹), 고속(6800 s⁻¹))를 적용한 세 가지 전극 샘플(A, B, C)을 비교 분석하였다. 먼저, 기초적인 전극 샘플별 주요 특성은 Table 1에 요약하여 제시되었다.

먼저 제조된 건식 전극의 전기화학적 성능을 평가하기 위해 율속 특성(Rate Capability)과 충방전 전압 곡선을 분석하였다.

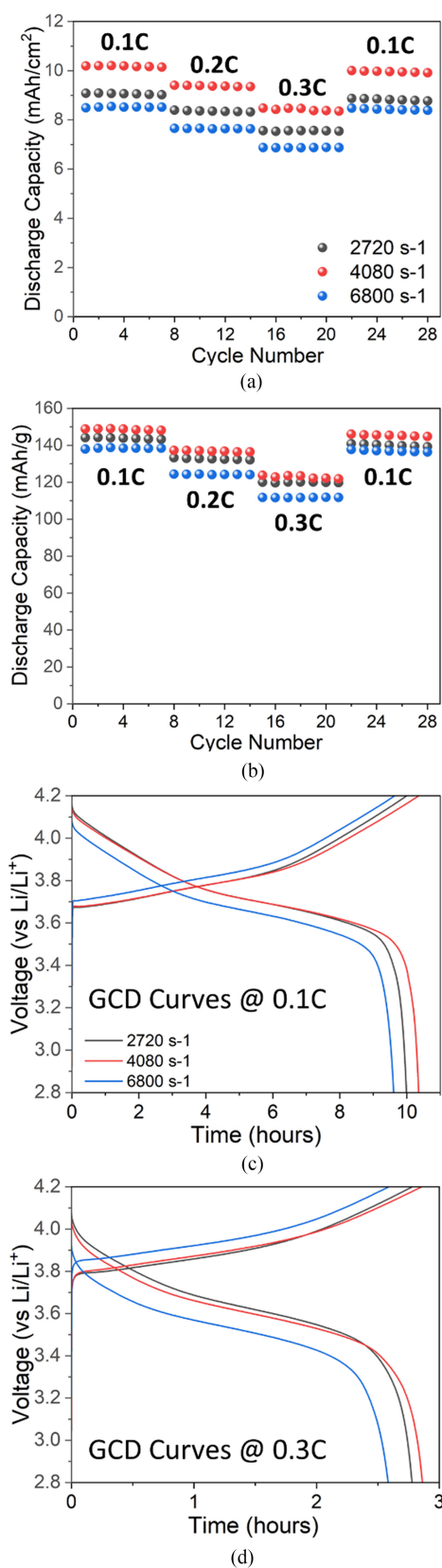


Fig. 5 Electrochemical performance of dry electrodes prepared at different shear rates. Rate capability at various C-rates ranging from 0.1 to 0.3 C in terms of (a) areal capacity (mAh/cm²) and (b) specific capacity (mAh/g). Galvanostatic charge-discharge profiles at (c) 0.1 and (d) 0.3 C

Table 1 Comparison of key parameters of the dry electrodes

Sample	A (2720 s ⁻¹)	B (4080 s ⁻¹)	C (6800 s ⁻¹)
Loading mass [mg/cm ²]	62.98	68.50	61.52
Thickness [μm]	301	268	300
Density [g/cc]	1.94	2.56	2.05
IR Drop at 0.3 C [V]	0.126	0.154	0.280
Resistance [Ω·cm ²]	46.2	52.1	105.4

Fig. 5(a)는 각기 다른 충전 속도(0.1-0.3 C) 조건에서 전단 속도 별 샘플의 방전 용량(Discharge Capacity) 추이를 보여준다. 중간 정도의 전단율(4080 s⁻¹)이 적용된 샘플 B는 모든 C-rate 구간에서 가장 우수한 용량을 기록하였으며, 0.1 C 조건에서 약 10 mAh/cm² 이상의 높은 용량을 안정적으로 구현함을 확인할 수 있다. 반면, 가장 높은 전단 속도(6800 s⁻¹)로 제조된 샘플 C는 전 구간에서 가장 낮은 용량 거동을 보였으며, C-rate가 증가함에 따라 성능 격차가 더욱 심화되는 경향을 나타냈다. 전극 무게당 비용량(Specific Capacity, mAh/g) 기준의 분석은 전극 내부의 활물질 분말의 효율적인 반응 특성을 더욱 잘 보여준다(Fig. 5(b)). 이 경우에도 여전히, 적정 수준의 전단율(4080 s⁻¹) 조건이 가장 우수하게 나타나며, 과도 전단(6800 s⁻¹) 조건에서는 가장 낮은 성능을 보임을 확인할 수 있다. 이는 상기 전극 미세구조의 차이 특성(Figs. 2 및 3)과 연계되어, 전체 활물질 분말 표면에 균일하고 원활한 전자/이온 전달 특성에 기인한 것으로 추정된다.

성능 차이는 Figs. 5(c)와 5(d)에 나타난 충방전 전압 곡선(Galvanostatic Charge-discharge Curves, GCD Curves)을 통해 더욱 명확히 설명된다. 0.1 (Fig. 5(c))와 0.3 C (Fig. 5(d)) 조건 모두에서, 샘플 C는 방전 초기 단계부터 급격한 전압 강하(Voltage Drop, IR Drop)를 보이며 큰 분극(Polarization) 현상이 발생함을 확인할 수 있다. 이는 0.3 C의 고속 충방전 조건에서 샘플 C가 완전 방전 전압 하한(Cut-off Voltage: 2.8 V)에 빠르게 도달하게 함으로써, 결과적으로 유효 방전 용량을 크게 제한하는 주된 원인으로 작용하였다. 이에 반해 샘플 B는 가장 완만한 전압 평탄 구간(Voltage Plateau)을 길게 유지하며 높은 방전 용량 특성과, 우수한 전기화학적 가역성, 그리고 에너지 효율을 보임을 확인할 수 있다.

이 같은 전기화학적 성능과 거동 특성의 차이는 Table 1에 요약된 각 전극의 주요 물성과 전기적 특성 간의 상관관계로 규명할 수 있다. 가장 우수한 성능을 보인 샘플 B는 2.56 g/cc의 가장 높은 전극 밀도와 68.50 mg/cm²의 로딩 양을 나타냈다. 높은 전극 밀도는 활물질 간의 패킹 효율(Packing Efficiency)이 극대화되었음을 의미하며, 동일 부피 및 면적당 더 많은 활물질을

전극 내에 부여할 수 있어, 에너지 저장 밀도를 극대화하는 데 기여한다. 주목할 점은 0.3 C 조건에서의 IR Drop (ΔV) 측정값과 이를 바탕으로 역산된 저항(Resistance, $\Omega \cdot \text{cm}^2$) 수치이다. 샘플 C는 0.280 V의 가장 높은 IR Drop을 기록하였으며, 이에 상응하여 산출된 저항 값은 $105.4 \Omega \cdot \text{cm}^2$ 에 달한다. 이는 샘플 A ($46.2 \Omega \cdot \text{cm}^2$)와 샘플 B ($52.1 \Omega \cdot \text{cm}^2$) 대비 두 배 이상 높은 수치이다. 특히, 전극 필름의 전기전도도 자체는 과도 전단 조건에서도 크게 하락하지 않았는데 반해, 전기화학적 셀 저항 특성이 크게 증가한 것을 미루어 볼 때, 이처럼 급격히 증가된 전지 셀의 내부 저항은 과도한 바인더 피복에 의한 활물질의 전기적 고립(Electronic Isolation)과, 낮아진 밀도에도 불구하고 국부적 바인더 뭉침이 기공을 막아 유효 이온 전도 경로(Ionic Pathway)를 차단한 복합적 결과에 기인한 것으로 판단된다. 다시 말해, 전극 필름 전체의 전기전도도 특성보다, 전극 구조 내부에서 도전재와 활물질이 균일하게 섞여 결합된 미세구조가 형성되며 실질적인 활물질 표면으로의 전자/이온 전도 특성이 이차전지의 높은 전기화학적 성능 확보에는 더 중요한 것이다.

4. 결론

본 연구에서는 리튬 이온 전지용 건식 전극의 성능 극대화를 목표로, 고속 전단 혼합(High-shear Mixing) 기반의 분말 전처리 공정을 도입하고 전단율(Shear Rate)이 전극의 미세구조 형성 및 최종 전기화학적 성능에 미치는 영향을 체계적으로 규명하였다. 실험 결과에 따르면, 전단율은 PTFE 바인더의 섬유화 거동과 도전재의 분산 상태를 결정짓는 핵심 제어 인자임이 확인되었으며, 최적의 전극 물성을 확보하기 위해서는 바인더의 섬유화와 구성 입자 간 네트워크 형성 사이의 균형이 필수적임이 밝혀졌다.

구조적 및 기계적 분석을 통해, 적정 수준의 전단율 조건에서 PTFE 바인더가 이상적인 섬유상 네트워크를 형성하여 활물질과 도전재를 견고하게 결합시킴을 확인하였다. 반면, 과도한 전단율은 바인더 섬유의 파단과 도전재의 국부적 응집을 유발하여, 전극의 기계적 강도 저하 및 실질적인 활물질 분말 표면에서의 전기적 네트워크의 단절을 초래하는 것으로 분석된다. 이러한 전극 내부 미세구조의 차이는 전기화학적 성능에도 뚜렷하게 영향을 미치는 것이 확인되었다. 이는 건식 분말의 전처리 공정에서의 과잉 에너지가 오히려 전극 내부의 전자 및 이온 이동 경로를 저해하는 형태로 전극의 미세조직을 형성하여 성능 열화를 유발한다는 점을 정량적으로 입증한 결과이다.

결론적으로, 본 연구는 PTFE 바인더의 섬유화를 위해 분말 전처리 과정에서 단순히 높은 전단력을 인가하는 것이 건식 전극의 품질을 보장하지 않으며, 고성능 전극 제조를 위해서는 적정 수준의 임계 전단율(Critical Shear Rate) 공정 조건의 도출과 정밀한 제어가 필수적임을 보였다. 본 연구에서 제안한 전단율 기반의 전처리 공정 최적화 프로토콜과 전단율에 따른 건식 전극의 구조적, 기계적, 전기적, 전기화학적 특성 변화 경향은

향후 습식 공정을 대체할 차세대 건식 전극의 대량생산 기술 확보와 품질 관리에 있어 중요한 공정 설계 기반을 제공할 것으로 기대된다.

ACKNOWLEDGEMENT

본 연구는 서울과학기술대학교 교내 일반과제 연구비 지원으로 수행되었습니다.

REFERENCES

1. Kuang, Y., Chen, C., Kirsch, D., Hu, L., (2019), Thick electrode batteries: principles, opportunities, and challenges, *Advanced Energy Materials*, 9(33), 1901457.
2. Singh, M., Kaiser, J., Hahn, H., (2015), Thick electrodes for high energy lithium ion batteries, *Journal of The Electrochemical Society*, 162(7), A1196-A1201.
3. Jaiser, S., Muller, M., Baunach, M., Bauer, W., Scharfer, P., Schabel, W., (2016), Investigation of film solidification and binder migration during drying of Li-ion battery anodes, *Journal of Power Sources*, 318, 210-219.
4. Font, F., Protas, B., Richardson, G., Foster, J.M., (2018), Binder migration during drying of lithium-ion battery electrodes: Modeling and comparison to experiment, *Journal of Power Sources*, 393, 177-185.
5. Wood III, D., Li, J., Daniel, C., (2015), Prospects for reducing the processing cost of lithium ion batteries, *Journal of Power Sources*, 275, 234-242.
6. Hawley, W. B., Li, J., (2019), Electrode manufacturing for lithium-ion batteries—Analysis of current and next generation processing, *Journal of Energy Storage*, 25, 100862.
7. Lu, Y., Zhao, C.-Z., Yuan, H., Hu, J.-K., Huang, J.-Q., Zhang, Q., (2022), Dry electrode technology, the rising star in solid-state battery industrialization, *Matter*, 5(3), 876-898.
8. Oh, H., Kim, G.-S., Hwang, B. U., Bang, J., Kim, J., Jeong, K.-M., (2024), Development of a feasible and scalable manufacturing method for PTFE-based solvent-free lithium-ion battery electrodes, *Chemical Engineering Journal*, 491, 151957.
9. Oh, H., Kim, G.-S., Bang, J., Kim, S., Jeong, K.-M., (2025), Dry-processed thick electrode design with a porous conductive agent enabling 20 mA h cm^{-2} for high-energy-density lithium-ion batteries, *Energy & Environmental Science*, 18(2), 645-658.
10. Choi, H., Moon, D., Sheem, J., Koo, J. K., Hong, S., Oh, S.-M., Kim, Y.-J., (2023), A solvent-free process enabled by polytetrafluoroethylene/carbon black composites for fabricating electrodes for lithium-ion batteries with a high volumetric energy, *Journal of Electrochemical Society*, 170(9), 090511.

11. Tao, R., Steinhoff, B., Sun, X.-G., Sardo, K., Skelly, B., Meyer III, H., Sawicki, C., Polizos, G., Lyu, X., Du, Z., Yang, J., Hong, K., Li, J., (2023), High-throughput and high-performance lithium-ion batteries via dry processing, *Chemical Engineering Journal*, 471, 144300.
12. Zhang, Y., Lu, S., Lou, F., Yu, Z., (2023), Solvent-free lithium iron phosphate cathode fabrication with fibrillation of polytetrafluoroethylene, *Electrochimica Acta*, 456, 142469.
13. Torre-Gamarra, C., Sotomayor, M. E., Sanchez, J.-Y., Levenfeld, B., Varez, A., Laik, B., Pereira-Ramos, J.-P., (2020), High mass loading additive-free LiFePO_4 cathodes with 500 μm thickness for high areal capacity Li-ion batteries, *Journal of Power Sources*, 458, 228033.
14. Yonaga, A., Kawauchi, S., Mori, Y., Xuanchen, L., Ishikawa, S., Nunoshita, K., Inoue, G., Matsunaga, T., (2023), Effects of dry powder mixing on electrochemical performance of lithium-ion battery electrode using solvent-free dry forming process, *Journal of Power Sources*, 581, 233466.



Minjun Park

B.S. Candidate in the School of Mechanical Systems Engineering, Seoul National University of Science and Technology. His research interest is battery electrode manufacturing.

E-mail: pmj7792@seoultech.ac.kr



Minkyu Yang

B.S. Candidate in the School of Mechanical Systems Engineering, Seoul National University of Science and Technology. His research interest is battery electrode manufacturing.

E-mail: yangminkyu5118@seoultech.-ac.kr



Minseok On

B.S. Candidate in the School of Mechanical Systems Engineering, Seoul National University of Science and Technology. His research interest is battery electrode manufacturing.

E-mail: 5493ws@seoultech.ac.kr



Jaehak Lee

Principal Researcher in the Autonomous Manufacturing & Process R&D Department, Korea Institute of Industrial Technology. His research interest is precision engineering.

E-mail: ljh1125@kitech.re.kr



Jae Young Seok

Assistant Professor in the School of Mechanical Systems Engineering, Seoul National University of Science and Technology. His research interests are nanomaterials and their applications to energy storage devices.

E-mail: seokjy@seoultech.ac.kr