

## CVD로 합성한 다중벽 탄소나노튜브의 리튬저장특성 (Li-Storage Properties of Multiwall Carbon Nanotubes Prepared by CVD.)

안동대학교 재료공학부 안중호\*,  
한국기계연구원 김용진, 아주대학교 기계 및 산업공학부 정형식

### 1. 서론

탄소나노튜브(carbon nanotubes; CNT)는 독특한 기계적, 전기, 전자적 구조를 가지고 있어 나노미터 규모의 전자소자, 화학 필터, 에너지 저장용 소재 등의 많은 응용 분야가 예상되고 있다. 특히 현재 상용되고 있는 리튬이온전지의 부극재가 탄소재료들이며, 탄소는 리튬과 가역적으로 반응한다는 점에 비추어 탄소나노튜브는 리튬이온전지의 전극재료로도 응용 가능성이 높다. 이러한 탄소나노튜브의 전기화학적 성능은 그 구조, 형상, 불규칙도(disorder) 등에 크게 좌우될 것으로 예상된다. 본 연구에서는 CVD(혹은 Combustion flame) 방법으로 다중벽(multiwall) 탄소나노튜브를 합성하고 그 리튬이온 저장 및 전기화학적 특성을 조사하였다.

### 2. 실험방법

다중벽 CNT는 고에너지밀링한 Ni,Co,Ni,Fe/MgO, TiO<sub>2</sub>, SiO<sub>2</sub> 복합체를 촉매로하여 acetylene분위기 하 800°C에서 1/2 시간 연소 반응시켜 합성하였다. 반응로는 합성온도 전후 Ar/H<sub>2</sub> 분위기에서 가열 및 냉각하였다. 합성 후 CNT에 혼합된 촉매는 산과 증류수로 제거하였다. 얻어진 CNT는 XRD 및 TEM으로 구조를 분석한 후, Li-ion cell의 부극으로 조립하여 전기화학적 특성을 조사하였다. 전지용량 측정을 위한 충방전실험은 Li을 counter 전극으로 한 2-electrode test cell을 0.01~3.0V 사이클로, cyclic voltammogram 측정은 Li을 counter 및 reference 전극으로 사용한 3-electrode cell로 0.20mV/S scan속도로 행하였다. 교류 임피던스 측정은 3.0~0.5V에서 5회 충방전하여 안정화 시킨 후 행하였다. 전해액은 1M의 LiPF<sub>6</sub>를 ethylene carbonate 및 dimethyl carbonate를 용해시킨 혼합용액이었으며, separator는 Celgrad 2500을 사용하였다. 모든 분말의 취급, cell의 조립, 측정은 Ar 분위기 하에서 행하였다.

### 3. 결과 및 고찰

제조된 multiwall CNT의 외경은 수 십 nm 였으며 부분적으로 비정질 탄소도 포함하고 있었다. 합성된 CNT를 부극으로 사용하여 최초방전시 0.8V에서 plateau가 나타났으며 이는 SEI (solid electrolyte interface) film 생성에 기인한 것으로 보인다. 최초 방전시 리튬이온의 저장용량은 800 mAh/g 이상으로 매우 높았으나 2회 사이클 후 크게 감소하였다. 리튬이온의 저장 특성은 전류밀도에 따라 민감히 변화하였으며, 10 mA/g 시 가역 용량은 340 mAh/g 이었다. 일반적으로 높은 전류 밀도에서 가역용량이 감소하는 경향을 보여주었다. 리튬이온의 저장은 3.0 ~ 1.5V에서는 매우 작았으며 1.5V 이하의 값에서 일어났다. 교류임피던스 측정 결과, 교환전류밀도(ie)는 전극의 전압 값에 거의 무관하였으나 Li의 확산계수는 전극내 Li 이온의 농도증가에 따라 크게 감소하였다. 향후 연구를 통하여 CNT의 직경 조절, 보다 균질화된 구조, tip의 개봉 등을 통해 리튬저장 특성이 개선 될 수 있을 것으로 생각된다.