

리튬 금속 전지를 위한 PEGDA 반고체 전해질의 경화 조건 최적화

전서혜*, ** · 장보윤*, † · 김대일*, †

*한국에너지기술연구원 에너지저장연구단, **고려대학교 신소재공학과

(2025년 7월 18일 접수, 2025년 9월 4일 수정, 2025년 9월 18일 채택)

Optimization of Curing PEGDA Quasi-solid-state Electrolytes for Lithium Metal Batteries

Seohye Jeon*, **, Boyun Jang*, †, and Daeil Kim*, †

*Energy Storage Department, Korea Institute of Energy Research, 152, Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34129, Korea

**Department of Materials Science and Engineering, Korea University, 145 Anam-ro, Seongbuk-gu, Seoul 02841, Korea

(Received July 18, 2025; Revised September 4, 2025; Accepted September 18, 2025)

초록: 본 연구는 리튬 금속 음극의 계면 불안정성과 수명 저하 문제를 해결하기 위해, poly(ethylene glycol) diacrylate (PEGDA) 기반 반고체 전해질의 고분자 함량 및 경화 조건이 전해질 특성과 전지 성능에 미치는 영향을 분석하였다. Fourier-transform infrared (FTIR) 분석을 통해 겔화 진행도를 평가하였으며, 전기화학 측정과 고로딩 NCM811 ($\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{O}_2$) 양극 적용 전지를 이용한 충·방전 실험 결과, 4 wt% PEGDA 조성 및 50-60 °C의 경화 조건에서 가장 우수한 용량 유지율과 전기화학적 안정성이 나타났다.

Abstract: The influence of polymer content and curing conditions of PEGDA-based quasi-solid electrolytes on interfacial stability and cycling performance in lithium metal batteries were investigated. To assess the degree of polymerization, Fourier-transform infrared (FTIR) spectroscopy measurement was conducted, focusing on the consumption of acrylate functional groups. Electrochemical impedance spectroscopy, linear sweep voltammetry, and critical current density tests were used to evaluate ionic conductivity, electrochemical stability, and lithium plating/stripping behavior. In addition, high-loading NCM811 ($\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{O}_2$)/Li metal cells were assembled to examine cycling performance under practical conditions. Among various compositions, the electrolyte containing 4 wt% PEGDA cured at 50-60 °C exhibited the highest capacity retention and electrochemical stability. These results highlight that the optimized processing conditions significantly enhance the performance and reliability of quasi-solid-state lithium metal batteries.

Keywords: quasi-solid state battery, gel-polymer electrolyte, Fourier-transform infrared.

서 론

리튬 이온 배터리(lithium-ion battery)는 소형 전자기기부터 전기자동차에 이르기까지 다양한 에너지 저장 시스템에 널리 활용되어 왔으며, 지속적인 연구가 이루어지고 있다.^{1,2} 그러나 고에너지 밀도에 대한 수요가 증가함에 따라, 리튬 이온 배터리는 점차 이론적 한계에 도달하고 있다.³

특히, 현재 상용화된 흑연 음극의 이론 용량(373 mAh g^{-1})은 고에너지 응용에 있어 한계를 보이며, 이를 극복하기 위한 대안으로 이론 용량이 약 3860 mAh g^{-1} 에 이르는 리튬 금속이 유망한 차세대 음극 소재로 주목받고 있다.^{4,5}

하지만 리튬 금속은 높은 반응성과 불균일한 전기화학 반응으로 인해 충·방전 과정에서 리튬 텐드라이트의 성장을 유도하고, 이는 분리막을 관통하여 내부 단락 및 열폭주와 같은 심각한 안전 문제를 초래할 수 있다.^{6,7} 또한, 유기 액체 전해질과의 반응으로 형성되는 고체 전해질 계면층(SED)은 구조적으로 불안정하며, 전해질의 지속적인 분해를 유도하여 전지의 수명 특성을 저하시킨다.^{8,9} 이러한 문제를 해결하고자 고체 전해질의 적용이 활발히 연구되고 있으나, 낮은 이온전도도 및 전극과의 계면 저항 문제 등의 한계로 인해 상온에서의 실용화는 여전히 제한적이다.¹⁰⁻¹²

이러한 배경에서 액체 전해질의 이온 전달 특성과 고체 전해질의 계면 안정성을 결합한 반고체 전해질(quasi-solid-state electrolyte, QSSE)이 유망한 대안으로 제시되고 있다.¹³⁻¹⁵ 특히, 반고체 전해질의 조성 및 경화 조건은 전해질의 물리적 구조와 계면 특성, 전기화학적 성능에 결정적인 영향을 미친

*To whom correspondence should be addressed.

byjang@kier.re.kr, ORCID 0000-0001-7637-1885

daeilkim@kier.re.kr, ORCID 0000-0002-2708-6049

©2026 The Polymer Society of Korea. All rights reserved.

다. 예컨대, 경화 온도가 낮거나 시간이 부족할 경우 미반응 고분자가 잔존하여 화학적 불안정성을 유발할 수 있으며, 조성비가 적절하지 않으면 고분자가 전해질 내부에서 저항체로 작용해 이온 이동을 방해하고 수명을 단축시킬 수 있다.¹⁶

본 연구에서는 PEGDA 기반 반고체 전해질의 고분자 함량과 경화 조건이 전해질의 구조적 및 전기화학적 특성에 미치는 영향을 체계적으로 분석하였다. Fourier transform infrared(FTIR) 분석 결과, PEGDA 4 wt% 조성에서 50 °C로 1시간 경화한 시료는 완전한 겔화를 달성하였으며, 해당 조건에서 가장 높은 이온전도도(0.7 mS cm^{-1})와 임계 전류 밀도(3.0 mA cm^{-2})의 안정적 유지가 확인되었다. 또한, 고로딩 NCM811/리튬 금속 전지에 적용한 결과, 50 사이클 기준 72.9%의 용량 유지율을 나타내어, 반고체 전해질의 공정 조건이 전지 수명 특성에 결정적인 영향을 미침을 검증하였다. 본 결과는 리튬 금속 전지의 고에너지화 및 장수명 구현을 위한 반고체 전해질의 설계 및 제조 공정 최적화에 있어 중요한 기초 자료로 활용될 수 있다.

실험

재료. PEGDA 기반 반고체 전해질의 제조를 위해 Aldrich (USA)에서 구입한 단량체인 poly(ethylene glycol) diacrylate (PEGDA, $M_n \approx 250 \text{ g mol}^{-1}$)와 라디칼 개시제인 2,2'-azobis(2-methylpropionitrile) (AIBN, 99%)을 구입하여 사용하였다. 전해액은 Solbrain(Korea)에서 구입한 1 M LiPF₆ in EC/DEC(v/v=1:1) 용액에 FEC 3 wt%가 첨가된 제품을 사용하였다. Coin cell 제조를 위한 모든 부품은 Wellcos Corporation에서 구매하였다.

반고체 전해질 제조. 반고체 전해질은 다음의 공정에 따라 제조하였다(Figure 1). 먼저, 기본 전해액에 AIBN을 1.5 wt% 비율로 첨가한 후 자력 교반기를 이용하여 균일하게 혼합하였다. 이후 PEGDA를 각각 4 wt% 및 8 wt%의 비율로 첨가하고, 동일한 방식으로 추가 교반하여 전구체 용액을 제조하였다.

제조된 용액은 실리콘 몰드에 도포한 후, 50 °C 및 60 °C에서 각각 1시간 또는 2시간 동안 열경화(thermal curing)를 수행하여 반고체 전해질 필름을 얻었다.

화학적 특성 평가. PEGDA 기반 전해질의 경화 반응 정도를 확인하기 위해 Fourier transform infrared(FTIR) 분광 분석을 수행하였으며, 장비는 컴팩트 FTIR 분광기(Bruker, USA)를 사용하였다. 분석은 attenuated total reflectance(ATR) 모드로 진행하였으며, 시료는 경화 전과 경화 후 각각 측정하였다. 특히 PEGDA의 acrylate 작용기에 해당하는 불포화 C=C 결합의 신축 진동 퍼크(약 1638 cm^{-1} 및 1620 cm^{-1})를 중심으로 $1500\text{--}1700 \text{ cm}^{-1}$ 영역을 확대하여 분석하였고, 이를 통해 겔 전해질 내의 관능기 변화 및 가교 반응(gelation) 진행 정도를 평가하였다.

전기화학성능 평가. 전기화학적 성능 평가는 CR2032 형 coin cell을 이용하여 수행하였으며, 장비는 저전력형 충방전기(Wonatech, Korea)를 사용하였다. 양극은 NCM811 (활물질 적재량: 20 mg cm^{-2})을 사용하였으며, 음극은 $150 \mu\text{m}$ 두께의 리튬 금속을 적용하였다. 양극 슬러리는 활물질:도전제:바인더를 94:3:3(wt%)의 비율로 혼합하여 알루미늄 접전체에 도포한 뒤 진공 오븐에서 건조하였다. 조립된 전지는 0.1C의 전류 밀도 조건에서 반복적인 충·방전 테스트를 통해 용량 유지율 및 전압 안정성을 분석하였다. 전해질의 전기화학적 산화 안정성은 선형 주사 전위법(linear sweep voltammetry, LSV)을 통해 평가하였으며, 3.0 V부터 5.5 V까지 0.1 mV s^{-1} 의 스캔 속도로 측정하였다. 임계 전류 밀도(critical current density, CCD)는 대칭형 Li|Li 셀 구성에서 0.1 mA cm^{-2} 의 전류를 1시간 간격으로 인가하며, 이후 0.1 mA cm^{-2} 씩 단계적으로 증가시켜 최대 3.0 mA cm^{-2} 까지 평가하였다.

결과 및 토론

반고체 전해질 용액 경화 전후 이미지. 반고체 전해질의 경화 조건을 확보하기 위해, 가장 먼저 경화조건에 따른 전

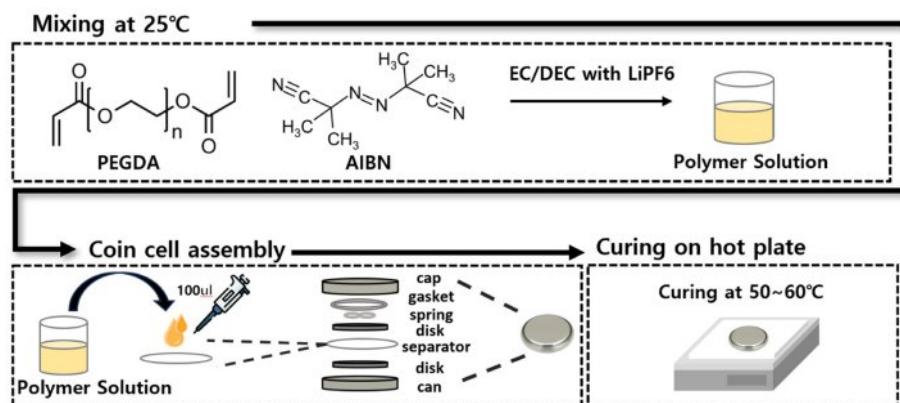


Figure 1. Experimental procedure of gel-polymer electrolyte.

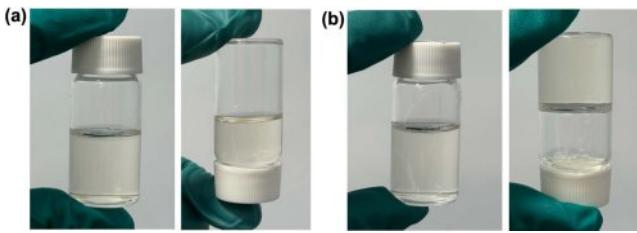


Figure 2. Images of PEGDA-based quasi-solid electrolyte solutions: (a) before; (b) after curing.

해질의 유동성 변화에 대한 실험을 수행하였다. Figure 2는 PEGDA 기반 반고체 전해질의 열 경화 전후 상태를 보여주는 대표적인 예이다. 4 wt%의 PEGDA를 포함한 전해질의 60 °C에서 한 시간 경화 전후를 관찰하였다. Figure 2(a)에서 보이는 바와 같이, 경화 이전의 전해질 용액은 액상으로 존재하여 샘플병을 뒤집을 경우 액체의 유동성을 그대로 유지하고 있다. 반면에, Figure 2(b)의 열 경화 후 사진에서는 전해질 용액이 젤 형태로 존재하며, 이는 PEGDA의 가교 반응에 의해 3차원 네트워크 구조가 형성됨에 따라 액체 상태에서 젤 상태로의 물리적 전환이 이루어진 것으로 판단된다. 보다 세부적으로, 유동성이 없는 상태에서 액체의 분리가 최소 한 시간 내에 발생하지 않는 조건을 기준으로 경시 관찰을 통해 최적 경화 조건을 도출하였다. 본 결과는 PEGDA 기반 전해질이 열 경화를 통해 효과적으로 젤화됨을 시각적으로 관찰하는 것으로, 이후 반고체 전해질의 특성 평가 및 전기화학적 성능 분석에 대한 근거를 제공한다.

반고체 전해질의 가교 정도 분석(FTIR). 경시 변화를 통한 경화 조건을 통과한 젤 전해질에 대한 보다 면밀한 경화 특성을 확인하기 위해 추가적인 분석을 수행하였다. Figure 3은 PEGDA 기반 반고체 전해질의 열 경화 가교 정도를 평가하기 위해 다양한 경화 조건에서 FTIR 분석을 수행한 결과이다. 특히, PEGDA의 acrylate 작용기에서 기인하는 불포화 C=C 결합의 신축 진동에 해당하는 피크(1638 cm^{-1} 및 1620 cm^{-1})를 확인하기 위해 Figure 3(b)에 보이는 바와 같이, $1500\text{--}1700 \text{ cm}^{-1}$ 범위를 확대한 스펙트럼을 함께 제시하였다. 경화를 진행하지 않은 시료에서는 PEGDA의 전형적인 C=C 신축 진동 피크가 뚜렷하게 관찰되며, 이는 고분자 내 이중 결합이 반응하지 않았음을 나타낸다. 한편, PEGDA 함량이 4 wt%인 전해질 조성에 대해 60 °C에서 30분간 경화를 진행한 시료는 해당 피크의 강도가 소폭 감소하였고, 8 wt% PEGDA 조성에 동일한 경화 조건을 적용한 경우에는 더욱 현저한 감소가 나타났다. 반면, 4 wt% PEGDA 조성에 대해 50 °C에서 1시간 동안 경화한 경우에는 C=C 피크가 완전히 관찰되지 않으며, 이는 이중 결합이 모두 소모되어 포화된 C-C 결합으로 전환되었음을 의미한다. 다시 말해, 이 조건에서는 첨가한 PEGDA가 완전히 고분자화되어 안정적인 젤 구조가 형성되었다는 것을 의미한다.

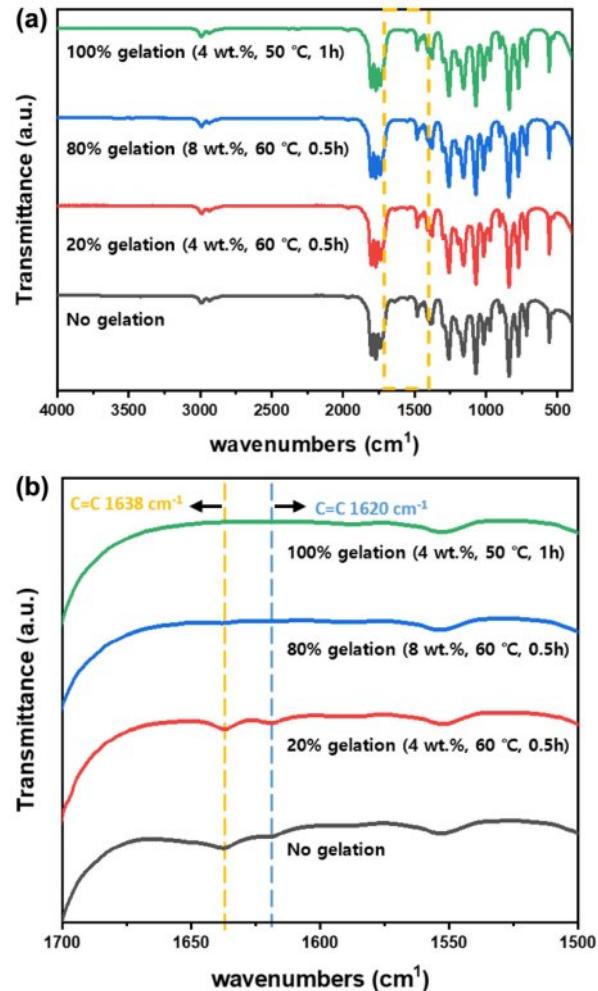


Figure 3. (a) Full ranged; (b) magnified FTIR spectra of the quasi-solid electrolytes with varying the curing conditions.

경화 조건 및 고분자 함량에 따른 전기화학적 특성 분석. 다양한 고분자 함량과 경화 조건에 따른 반고체 전해질의 전기화학 특성 분석을 다음과 같이 수행하였다. 구체적으로, Figure 4는 PEGDA 기반 반고체 전해질의 고분자 함량(4 wt%, 8 wt%) 및 경화 조건($50 \text{ }^{\circ}\text{C}$, $60 \text{ }^{\circ}\text{C}$, 1h)에 따른 이온전도도, 전압 안정성, 그리고 임계 전류 밀도 특성을 종합적으로 비교한 결과를 나타낸다. Figure 4(a)는 공정 조건에 따른 이온 전도도 측정을 위해 전기화학 임피던스 분광법(electrochemical impedance spectroscopy, EIS)을 적용한 결과이다. PEGDA 함량이 4 wt%일 때, $50 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 에서 1시간 경화된 시료는 약 2.0Ω 의 저항을 나타내었으며, 이로부터 계산된 이온전도도는 약 0.7 mS cm^{-1} 이다. 같은 함량에서 경화 온도를 $60 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 로 증가시키면 시리즈 저항이 2.6Ω 으로 증가하고 이온전도도는 약 0.53 mS cm^{-1} 로 소폭 감소하였다. 이는 PEGDA의 고분자화에 따른 전해질 내부 저항증가에 기인한 것으로 판단된다. 한편, PEGDA 8 wt% 조성의 경우 $50 \text{ }^{\circ}\text{C}$, $60 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 경화 조건에서 각각

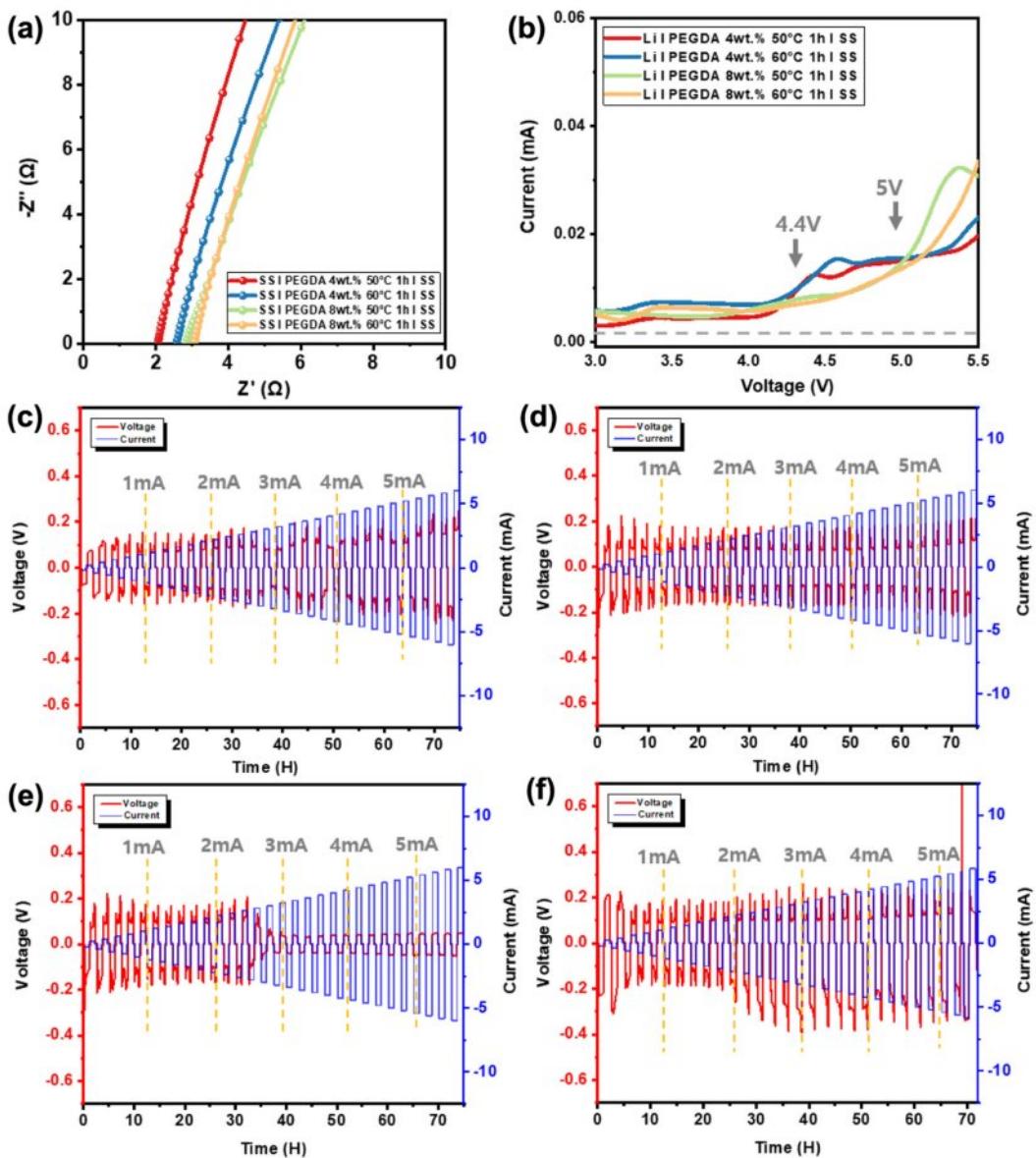


Figure 4. (a) Nyquist plot; (b) linear sweep voltammetry curves of the quasi-solid electrolytes with varying the curing conditions, voltage and current profiles in time domain of the quasi-solid electrolytes of (c) PEGDA 4 wt%, 50 °C, 1 h; (d) PEGDA 4 wt%, 60 °C, 1 h; (e) PEGDA 8 wt%, 50 °C, 1 h; (f) PEGDA 8 wt%, 60 °C, 1 h.

2.8 Ω, 3.0 Ω의 시리즈 저항 및 0.50 mS cm⁻¹, 0.46 mS cm⁻¹의 이온전도도를 보였다. 고분자의 함량이 증가됨에 따른 이온 전도도 저하인 것으로 해석된다. Figure 4(b)는 동일한 조건에서의 선형 주사 전위법을 통해 비교한 결과이다. 고분자 함량이 4 wt%인 시료들은 4.4V에서 약 0.012 mA의 산화 전류가 관찰되었으며, 8 wt%인 경우는 약 0.007 mA로 전류량이 더 적었다. 이는 고분자 함량이 낮아질수록 액체 전해질의 함량이 상대적으로 증가하고, 이에 따라 더 낮은 산화 안정성 전위를 가져 더 높은 산화 전류가 나타나는 것으로 해석된다. 리튬 금속 전지의 경우, 리튬 금속 음극과 반고체 전해질 계면

안정성이 매우 중요하다. 이러한 계면 안정성을 확인하기 위해 리튬 금속 대칭 셀을 제작하여 전류밀도에 따른 분극 특성을 확인하였다. Figure 4(c)~(f)는 각 공정 조건에 따른 전해질의 임계 전류 밀도를 평가한 결과이다. PEGDA 4 wt% 시료는 50 °C 및 60 °C 경화 조건 모두에서 최대 3 mA cm⁻²까지 분극 특성 없이 일정한 전압 안정성을 유지하였다. 반면, PEGDA 8 wt% 시료의 경우, 50 °C 경화 조건에서는 약 1.3 mA cm⁻²에서 급격한 전압 강하가 나타났고, 60 °C 경화 조건에서도 높은 전류 영역에서 전압이 지속적으로 증가하였다. 이는 고분자 함량 증가에 따라 전해질 내 이온 이동 경로가 제한되고, 고

체-고체 계면 저항 증가, 전해질의 구조적 불안정성으로 인한 열화가 가속화된 결과로 해석된다.

고로딩 NCM811 리튬-금속 전지 사이클 성능 평가. 본 연구에서 제조된 반고체 전해질의 리튬 금속 전지 성능은 양극의 로딩에 따라 급격하게 차이가 나는 것으로 알려져 있다. 이는 결국, 충방전 중에 전해질에 가해지는 전류량의 차이에 기인할 것이다. 따라서, 본 연구에서는 20 mg cm^{-2} 이상의 고로딩 전극을 사용하여 제조된 반고체 전해질의 성능을 평가하였다. 실제로, 로딩이 10 mg cm^{-2} 이하의 전극을 적용 시 모든 전해질이 유사한 성능을 나타내는 것을 확인한 바 있다. Figure 5는 고분자 함량과 경화 조건이 서로 다른 PEGDA 기반 반고체 전해질을 적용하여 제작한 고로딩 NCM811 (loading: 20 mg cm^{-2}) 양극과 리튬 금속 음극전지의 포메이션 전압 프로파일 및 사이클 성능을 비교한 결과이다. Figure 5(a)와 (c)는 4 wt% 및 8 wt%의 PEGDA 함량에서 각각 50°C 및 60°C 로 열경화한 전해질을 적용한 셀의 첫 번째 사이클 (Formation) 전압-용량 곡선이다. Figure 5(a)와 (c)는 초기 가역용량이 각각 199.9 mAh g^{-1} (50°C), 200.1 mAh g^{-1} (60°C)로 유사한 수준을 보였다. 반면, 8 wt% 조성에서는 초기 가역용량이 각각 199.9 mAh g^{-1} (50°C), 191.3 mAh g^{-1} (60°C)로, 경화 온도가 60°C 일 때만 상대적으로 낮은 초기 가역용량을 나타낸다. 특히, 모든 시료에서 60°C 경화 조건 적용 시 초기 충전 과정에서 과전압 현상이 관찰되었으며, 이는 고분자 경화 반응의 과진행으로 인한 전극과 전해질 간 계면 접촉 불량에 기인한 것으로 판단된다. 이러한 불안정한 계면 특성은 제조된 전지에

대한 전기화학 임피던스 분광법 측정 결과를 통해서도 확인할 수 있다. Figure S1에서 보이는 바와 같이, 60°C 에서 경화를 수행한 전지들은 모두 150Ω 정도의 총 계면 저항을 나타내며, 경화 이전에 비해 3배 정도로 증가하였다. 반면에, 50°C 에서 경화를 수행한 전지들은 100Ω 내외의 총 계면 저항을 나타내었다.

Figure 5(b)와 (d)는 각 조건에서의 50 사이클 동안의 용량 유지율을 비교한 그래프이다. 4 wt% 조성에서는 50°C , 60°C 경화 조건에서 각각 67.7%, 72.9%의 용량 유지율을 각각 나타냈다. 50°C 조건은 비교적 완만한 용량 감소를 보이다가 50사이클 이후 급격히 감소한 반면, 60°C 조건은 전체적으로 빠른 감소 경향을 보였으나 급격한 저하는 관찰되지 않았다. 반면, 8 wt% 조성에서는 50사이클 기준 각각 29.8% (50°C), 15.3% (60°C)의 용량 유지율을 보였으며, 특히 60°C 경화 조건에서는 초기부터 급격한 수명 저하가 관찰되었다. 이는 앞에서도 설명한 바와 같이, 고함량 고분자가 전해질과 리튬 금속 계면에서 큰 저항체로 작용하고, 이온 전도 경로를 방해하며, 전해질의 구조적 열화를 가속화하기 때문이라고 판단된다. 이러한 결과는 50사이클 이후의 충방전 곡선에서 관찰되는 IR-drop으로도 확인되고 있다. 결론적으로, 고로딩 양극을 적용할 경우, 고분자 함량과 경화 조건이 리튬 금속 전지의 수명 성능에 큰 영향을 주는 것을 확인하였으며, 이는 반고체 전해질과 리튬 금속 음극과의 계면 특성에 기인한 것을 확인할 수 있었다.

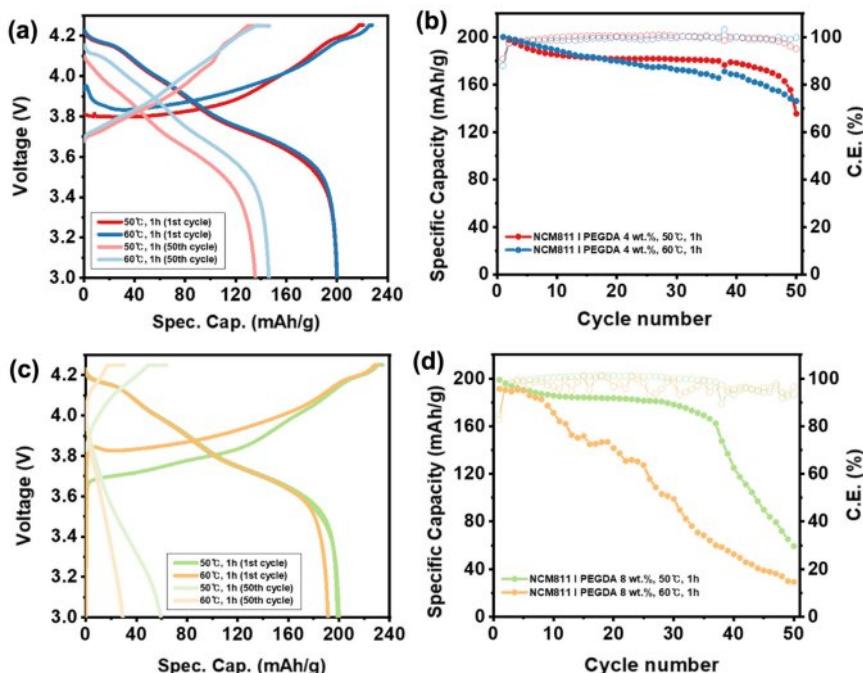


Figure 5. Voltage profiles of (a, c) formation (1st) and 50th cycle; and (b, d) cycle performances of NCM811||PEGDA (a, b) 4 wt%; (c, d) 8 wt% Li with various curing conditions.

결 론

본 연구에서는 PEGDA 기반 반고체 전해질에 대해 고분자 함량과 경화 조건이 전해질의 구조적 특성, 전기화학적 성능 및 리튬 금속 전지 구동 특성에 미치는 영향을 종합적으로 분석하였다. FTIR 분석을 통해 PEGDA의 C=C 작용기의 소멸 여부를 확인한 결과, 경화 온도 50 °C, 1시간 조건에서 완전한 가교 반응이 진행되어 100% 겔화가 진행됨을 확인하였다. 이온전도도 및 전압 안정성 평가에서는 공정 조건에 따른 전도도 차이는 크지 않았으나, 고분자 함량이 증가할수록 산화 안정성이 향상됨을 관찰하였다. 임계 전류 밀도 측정에서는 고분자 함량이 낮은 시료에서 전류에 대한 우수한 안정성이 확인되었으며, 반면 고분자 함량이 8 wt% 이상인 전해질의 경우 내부 저항 증가로 인해 리튬 이온 이동이 저해되고 전기화학적 안정성이 저하되는 경향을 보였다.

고로딩 NCM811/리튬 금속 전지 셀의 사이클 성능 테스트 결과, 4 wt% PEGDA 조성은 8 wt% 조성 대비 더 높은 용량 유지율과 전압 안정성을 나타냈으며, 특히 경화 조건에 따라 전지 수명 및 과전압 거동에도 뚜렷한 차이를 보였다. 종합적으로 볼 때, 본 연구에서 제시한 PEGDA 4 wt%, 경화 온도 50-60 °C 조건은 우수한 전기화학적 특성과 장수명 사이를 성능을 동시에 확보할 수 있는 최적의 반고체 전해질 공정 조건으로 판단된다. 이는 향후 고에너지 리튬 금속 전지 개발에 있어 공정 최적화 및 소재 설계에 유용한 기초 자료로 활용될 수 있을 것이다.

감사의 글: 이 논문은 2023년도 정부(방위사업청)의 재원으로 국방기술진흥연구소의 지원을 받아 수행된 연구임(22-107-C00-007(KRIT-CT-23-055), 휴머노이드용 장수명 전원기술).

이해상충: 저자(들)는 이해상충이 없음을 선언합니다.

Supporting Information: PEGDA 기반 반고체 전해질의 경화 전-후 Nyquist plot. 이 자료는 다음 사이트에서 얻을 수 있습니다(<http://journal.polymer-korea.or.kr>).

참 고 문 헌

1. Weber, R.; Genovese, M.; Louli, A. J.; Hames, S.; Martin, C.; Hill, I. G.; Dahn, J. R. Long Cycle Life and Dendrite-Free Lithium Morphology in Anode-Free Lithium Pouch Cells Enabled by a Dual-Salt Liquid Electrolyte. *Nat. Energy* **2019**, 4, 683-689.
2. Zhao, H.; Deng, N.; Kang, W.; Li, Z.; Wang, G.; Cheng, B. Highly Multiscale Structural Poly(vinylidene Fluoride-Hexafluoropropylene)/Poly-m-phenyleneisophthalamide Separator with Enhanced Interface Compatibility and Uniform Lithium-Ion Flux Distribution for Dendrite-Proof Lithium-Metal Batteries. *Energy Storage Mater.* **2020**, 26, 334-348.
3. Li, M.; Lu, J.; Chen, Z.; Amine, K. Years of Lithium-Ion Batteries. *Adv. Mater.* **2018**, 30, 1800561.
4. Xu, W.; Wang, J.; Ding, F.; Chen, X.; Nasybulin, E.; Zhang, Y.; Zhang, J. G. Lithium Metal Anodes for Rechargeable Batteries. *Energy Environ. Sci.* **2014**, 7, 513-537.
5. Kim, S.; Kim, J. S.; Miara, L.; Wang, Y.; Jung, S. K.; Park, S. Y.; Kang, K. High-Energy and Durable Lithium Metal Batteries Using Garnet-Type Solid Electrolytes with Tailored Lithium-Metal Compatibility. *Nat. Commun.* **2022**, 13, 1883.
6. Wu, J.; Yuan, L.; Zhang, W.; Li, Z.; Xie, X.; Huang, Y. Reducing the Thickness of Solid-State Electrolyte Membranes for High-Energy Lithium Batteries. *Energy Environ. Sci.* **2021**, 14, 12-36.
7. Wu, J.; Rao, Z.; Liu, X.; Shen, Y.; Fang, C.; Yuan, L.; Huang, Y. Polycationic Polymer Layer for Air-Stable and Dendrite-Free Li Metal Anodes in Carbonate Electrolytes. *Adv. Mater.* **2021**, 33, 2007428.
8. Haas, R.; Janek, J. The Influence of Oxygen Dissolved in the Liquid Electrolyte on Lithium Metal Anodes. *J. Electrochem. Soc.* **2022**, 169, 110527.
9. Kim, J. Y.; Shin, D. O.; Chang, T.; Kim, K. M.; Jeong, J.; Park, J.; Lee, Y. G. Effect of the Dielectric Constant of a Liquid Electrolyte on Lithium Metal Anodes. *Electrochim. Acta* **2019**, 300, 299-305.
10. Wang, S.; Xu, H.; Li, W.; Dolocan, A.; Manthiram, A. Interfacial Chemistry in Solid-State Batteries: Formation of Interphase and Its Consequences. *J. Am. Chem. Soc.* **2018**, 140, 250-257.
11. Liu, Q.; Chen, Q.; Tang, Y.; Cheng, H. M. Interfacial Modification, Electrode/Solid-Electrolyte Engineering, and Monolithic Construction of Solid-State Batteries. *Electrochem. Energy Rev.* **2023**, 6, 15.
12. Shen, L.; Deng, S.; Jiang, R.; Liu, G.; Yang, J.; Yao, X. Flexible Composite Solid Electrolyte with 80 wt% $Na_{3.4}Zr_{1.9}Zn_{0.1}Si_{2.2}P_{0.8}O_{12}$ for Solid-State Sodium Batteries. *Energy Storage Mater.* **2022**, 46, 175-181.
13. Wang, D.; Xie, H.; Liu, Q.; Mu, K.; Song, Z.; Xu, W.; Xu, J. Low-Cost, High-Strength Cellulose-Based Quasi-Solid Polymer Electrolyte for Solid-State Lithium-Metal Batteries. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2023**, 62, e202302767.
14. Chang, Z.; Yang, H.; Zhu, X.; He, P.; Zhou, H. A Stable Quasi-Solid Electrolyte Improves the Safe Operation of Highly Efficient Lithium-Metal Pouch Cells in Harsh Environments. *Nat. Commun.* **2022**, 13, 1510.
15. Wang, H.; Wang, Q.; Cao, X.; He, Y.; Wu, K.; Yang, J.; Sun, X. Thiol-Branched Solid Polymer Electrolyte Featuring High Strength, Toughness, and Lithium Ionic Conductivity for Lithium-Metal Batteries. *Adv. Mater.* **2020**, 32, 2001259.
16. Ko, K. W.; Cho, T. Y.; Ham, D. S.; Kang, M.; Choi, W. J.; Cho, S. K. Preparation of Highly Adhesive Urethane-Acrylate-Based Gel-Polymer Electrolytes and Their Optimization in Flexible Electrochromic Devices. *J. Electroanal. Chem.* **2022**, 917, 116423.

출판자 공지사항: 한국고분자학회는 게재된 논문 및 기관 소속의 관할권 주장과 관련하여 중립을 유지합니다.