

논문 18-2-8

Polyoxyalkylene Glycol Acrylate기 Gel Polymer Electrolyte를 적용한 리튬이온폴리머전지의 전기화학적 특성

Electrochemical Performances of Lithium-ion Polymer Battery with Polyoxyalkylene Glycol Acrylate-based Gel Polymer Electrolyte

김현수^{1,a}, 김성일¹, 나성환¹, 문성인¹

(Hyun-Soo Kim^{1,a}, Sung-il Kim¹, Seong-Hwan Na¹, and Seong-In Moon¹)

Abstract

In this work, a gel polymer electrolyte (GPE) was prepared using polyoxyalkylene glycol acrylate (POAGA) as a macromonomer. LiCoO₂/GPE/graphite cells were prepared and their electrochemical properties were evaluated at various current densities and temperatures. The ionic conductivity of the GPE was more than $6.2 \times 10^{-3} \text{ S}\cdot\text{cm}^{-1}$ at room temperature. The GPE had good electrochemical stability up to 4.5 V vs. Li/Li⁺. POAGA-based cells were showed good electrochemical performances such as rate capability, low-temperature performance, and cycleability. The cells, also, passed a safety test such as the overcharge and nail-penetration test.

Key Words : Monomer, Polyethylene glycol triacrylate, Lithium ion polymer battery, Gel polymer electrolyte, Curable mixture, Ionic conductivity

1. 서 론

리튬이온전지는 1990년대 초 일본에서 상용화된 이후 휴대용 IT기기를 중심으로 수요가 꾸준하게 증가하고 있다. 리튬이온전지에 사용되는 전해액은 유기용매에 전해질염을 용해하여 리튬이온 도전성이 있는 액체 상태로 되어있어서 위험성이 따르고 있다. 예를 들어 dimethyl carbonate (DMC)나 dimethoxy ethane (DME) 등은 인화성이 높아서 위험물질로 분류된다. 실제 상용화되어 있는 리튬2차전지에서는 이러한 위험성을 배제하기 위하여 다양한 안전장치가 장착되어 있으나, 잠재적인 위험성을 갖고 있다. 최근에는 이러한 액체전해액을 젤화 시킨 젤플리머전해질을 사용하여 누액의 가

능성 등을 배제하고 안전성을 향상시킨 리튬이온 폴리머전지에 대한 연구가 활발하게 진행되고 있다. 현재 젤플리머전해질에서 액체 전해액을 고형화하기 위하여 검토되는 폴리머는 열가소계 고분자 및 가교기를 갖는 올리고며 중합체 등이 있다.

열가소계 고분자로는 polyacrylonitrile (PAN)[1], poly (vinylidene fluoride) (PVdF)[2], poly (ethylene oxide) (PEO)[3,4], poly (methylmethacrylate) (PMMA)[5] 등이 검토되고 있다. 특히, poly-vinylidene fluoride-hexafluoro propylene (PVdF-HFP)[6] 공중합체를 이용한 전지가 실용화되어 있다. 그러나, 열가소계 고분자를 이용하는 경우에는 전해액과 고분자의 혼합용액의 점도가 매우 높아서 전극 내부로 함침하는 것이 곤란하다. 또한 가교를 하지 않기 때문에 비교적 고온에서 전해질이 유동할 염려도 있다. 전지 내부에서 이상반응이 일어나 고온 상태가 되는 경우 전해액이 유동성이 있으면 이상반응이 일어나는 지점으로 새로운 전해질이 공급되어 이상반응이 멎추지 않는 경우도 발생한다.

1. 한국전기연구원 전지연구그룹

(경남 창원시 성주동 28-1)

a. Corresponding Author : hskim@keri.re.kr

접수일자 : 2004. 9. 30

1차 심사 : 2004. 11. 15

심사완료 : 2004. 12. 29

한편, 가교기를 갖는 고분자로는 tetra (ethylene glycol) diacrylate (TEGDA)[7], tri (ethylene glycol) dimethacrylate (TEGDMA)[8] 그리고 polyurethane acrylate (PUA)[9,10] 등이 있으며, 이는 아크릴레이트와 메타크릴레이트 단량체를 가교하여 매트릭스로 한 것이다. 이들 겔폴리머전해질의 상온 이온전도도는 약 $10^3 \text{ S}\cdot\text{cm}^{-1}$ 로써 리튬이온폴리머전지에서 필요한 이온전도도를 만족하지만 사이클 특성이 만족스런 수준에 도달하지 못하고 있는 실정이다. Polyoxyalkylene glycol acrylate (POAGA)은 액체 전해액과 상용성이 우수한 ethylene oxide기와 기계적 물성이 높은 propylene oxide기가 함유되어 있어서, 원하는 물성을 얻기가 용이한 macromonomer이다. 또한 말단에는 비닐결합이 3개가 존재하기 때문에 높은 가교밀도도 기대된다. Kono 등[11]은 LiClO₄염과 propylene carbonate (PC)로 구성된 겔폴리머전해질을 합성하고 약 $2.5 \times 10^3 \text{ S}\cdot\text{cm}^{-1}$ 대의 상온 이온전도도를 얻고 있다.

본 연구에서는 시험관을 이용하여 POAGA의 겔화 특성을 고찰하고, POAGA를 적용한 겔폴리머전해질을 합성하여 전기화학적 특성을 평가하였다. 뿐만 아니라, 600 mAh급 LiCoO₂/POAGA계 겔폴리머전해질/흑연 전지를 제조하고 전지 특성 및 안전성을 평가하였다.

2. 실험

겔폴리머전해질은 액체전해액에 가교형 단량체, 개시제를 혼합한 전구체를 열경화하여 제조하였다. 액체전해액으로는 전지등급의 1.0 M LiPF₆/ethylene carbonate (EC) + propylene carbonate (PC) + ethylmethyl carbonate (EMC) + diethyl carbonate (DEC) (30 : 20 : 20 : 30 wt%)를 사용하였다. 단량체로는 polyoxyalkylene glycol acrylate ($M_w = 11,000$)을, 개시제로는 bis (4-tert-butylcyclohexyl) peroxydicarbonate (BBP, Aldrich Chemical Co.)를 각각 사용하였다. 단량체는 액체전해액 대비 3 vol%를, 개시제는 단량체 대비 2 wt%를 혼합하였다. 최적 중합온도를 알아보기 위하여 시험관을 이용하여 50~80 °C에서 경화를 하였고, 겔화 시간을 고려하여 겔폴리머전해질은 60 °C에서 60분간 경화하였다. 전구체의 준비 및 주입 등은 수분의 영향을 배제하기 위하여 Ar 가스로 치환된 dry room에서 이루어졌다.

겔폴리머전해질의 이온전도도는 AC impedance analyzer (IM6, Zahner Elektrik)를 이용하여 측정하였다. 스테인리스강 blocking electrode를 사용하였고, 전극면적 및 폴리머전해질의 두께는 각각 3.14 mm² 및 0.1 mm로 하였다. 이온전도도는 -20 °C에서 60 °C 범위에서 측정하였고, 100 Hz에서 2 MHz 사이의 주파수 영역에서 5 mV의 전위차를 시편에게 부하했을 때의 임피던스 응답을 측정하였다.

겔폴리머전해질의 전기화학적 안정성은 cyclic voltammetry (CV)를 이용하여 평가하였다. 이는 3 전극을 사용하고 potentiostat (model 273, EG&G Co.)를 이용하였다. 작용전극으로는 스테인리스강을, 상대전극 및 참조전극으로는 리튬금속을 각각 사용하였다. 전극면적은 약 3 x 5 cm²로 하였고, 전위는 5 mV·s⁻¹의 속도로 -0.5 V에서 4.5 V (vs. Li/Li⁺)까지의 전위영역에서 전류를 측정하였다.

리튬이온폴리머전지의 정극의 조성은 LiCoO₂ : super P black : PVdF를 93 : 4 : 3 wt%로 하였고, 부극의 조성은 MCMB : PVdF를 95 : 5 wt%로 하였다. 제조된 각 슬러리는 건조 후 압연을 하고, 알루미늄 및 동 접전체 위에 코팅을 하였다. 제조된 전극은 적층하여 외장재로 사용한 Al laminated film 내부에 삽입하고 전구체를 주입한 후에 봉입하였다. 전지의 조립 및 전구체 주입공정도 역시 Ar 가스로 치환된 드라이룸에서 이루어졌다.

제조된 리튬이온폴리머전지의 전지 특성 및 안전성에 대하여 알아보았다. 전지의 방전율에 따른 방전특성을 알아보기 위하여 0.2C, 0.5C, 1C 및 2C에서 충방전을 하였으며, 평가는 MacCor 3000 시리즈를 이용하였다. 온도에 따른 리튬이온폴리머전지의 방전특성을 알아보기 위하여는 -20, -10, 0 및 23 °C에서 0.5C의 전류율에서 충방전 거동을 살펴보았다. 사이클특성은 23 °C에서 1C로 충방전하였을 때의 충방전 곡선을 측정하여 평가하였다. 리튬이온폴리머전지의 안전성을 알아보기 위하여는 과충전 및 관통시험을 하였다. 과충전은 전지를 완전히 방전시킨 후 전지용량의 250 %가 될 때까지 충전하였으며, 시험 중에 전지전압이 12 V에 도달하면 시험을 종료하였다. 관통시험은 전지를 완전히 충전한 후 전지의 중심에 직경이 5 mm인 침을 관통하였다. 관통 후에 전지는 발연 및 밭화가 없어야 하고, 전지의 부온도가 최고 100 °C 이하야야 한다.

3. 결과 및 고찰

POAGA를 겔폴리머전해질에 적용하기 위하여 시험관을 이용하여 중합조건을 알아보았다. 그림 1은 경화온도에 따른 POAGA계 겔폴리머전해질의 겔화 특성을 나타낸 곡선이다. 그림에서 보면 알 수 있듯이 경화온도가 증가함에 따라 겔화 시간은 지수함수적으로 감소하는 경향을 나타내었다. 이것은 겔폴리머전해질의 gellation이 일차적으로 온도에 지배되는 것을 나타낸다. POAGA계 겔폴리머전해질은 단량체 함량이 증가할수록 경화시간은 감소하였으며, 유판으로 확인되는 기계적 물성은 점점 단단해졌다. 이러한 거동은 단량체의 함량 증가로 인하여 가교밀도가 증가하기 때문에 일어나는 것으로 판단된다.

겔폴리머전해질의 이온전도도는 AC impedance analyzer를 이용하여 측정하였으며, 그 결과를 그림 2에 나타내었다. 임피던스 스펙트라는 커페시터와 직렬연결된 저항을 나타내는 직선만이 보이고 있다. 실수축 절편 값은 겔폴리머전해질의 저항을 나타내며, 전극면적 및 두께를 이용하여 이온전도도를 계산하면 23°C 에서는 약 $6.2 \times 10^{-3} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 였다. 그림 3에는 각 온도에서 계산한 겔폴리머전해질의 이온전도도를 나타낸 것이다. 그림에서 알 수 있듯이 온도가 증가함에 따라 이온전도도는 증가하였고, -20°C 에서도 약 $1.52 \times 10^{-3} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 로 높은 값을 나타내었다. 이는 단량체 함량이 액체전해액 대비 3 vol%로써 낮기 때문에 이온전도도가 액체 전해액에 거의 의존하는 것으로 사료된다. 겔폴리머전해질의 전기화학적 안정성을 알아보-

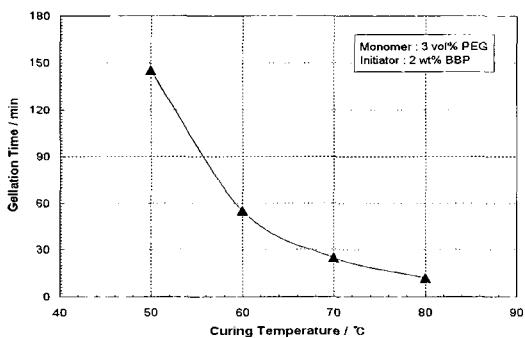


그림 1. 겔폴리머전해질의 중합온도에 따른 겔화 시간 변화.

Fig. 1. Variation of gellation time of GPE with polymerization temperature.

기 위하여 -0.5 V 에서 4.5 V (vs. Li/Li⁺) 영역에서 전위에 따른 전류거동을 그림 4에 나타내었다. -0.5 V 에서 0.5 V 사이의 전위영역 이외에는 전류값의 피크가 보이지 않고 있다. 현재 상용화되어 있는 리튬코발트산화물을 정극활물질로 사용하는 리튬2차전지는 대부분 4.25 V 이하의 전위영역에서 사용하고 있다. 따라서, POAGA를 사용한 겔폴리머전해질은 이 전위영역에서 전기화학적 안정성이 있다고 판단된다[12]. 전극을 부의 전위 방향으로 이동하면, 스테인리스강 전극 위의 리튬석출에 해당하는 -0.45 V 근방에서 피크가 관찰되었다. 반대 방향으로 스캔하면 리튬의 용해가 약 0.37 V 에서 관찰되었다. 전위의 스캔은 5회에 걸쳐 실시하였으며, 이때 피크전류가 사이클 진행에 관계없이 매우 일정하기 때문에 리튬의 석출과 용해에 따른 voltammogram은 매우 가역적이라 할 수 있다.

POAGA계 겔폴리머전해질을 적용한 리튬이온폴리머전지를 제조하고 전지 특성 및 안전성을 평가하였다. 리튬이온폴리머전지는 제조공정에 따라 개로전압의 변화를 측정하였다. 전해액 주입 후, 전공봉입을 거쳐 충분한 안정화를 거친 후 전지의 개로전압은 $100\sim150 \text{ mV}$ 였고, 경화공정을 거친 직후 개로전압은 약 $120\sim180 \text{ mV}$ 로써, 개로전압이 $20\sim30 \text{ mV}$ 정도 상승하였다. 일반적으로 액체 전해액을 사용하는 리튬2차전지의 임피던스는 $20\sim40 \text{ m}\Omega$ 범위이며, 겔폴리머전해질형 리튬이온폴리머전지의 임피던스는 경화과정을 거칠 때 조금 상승하였다가, pre-conditioning 공정을 거치면서 낮아진다. 제조된 리튬이온폴리머전지의 임피던스 값은 $20\sim35 \text{ m}\Omega$ 범위로 액체전해액 시스템과 유사하였다.

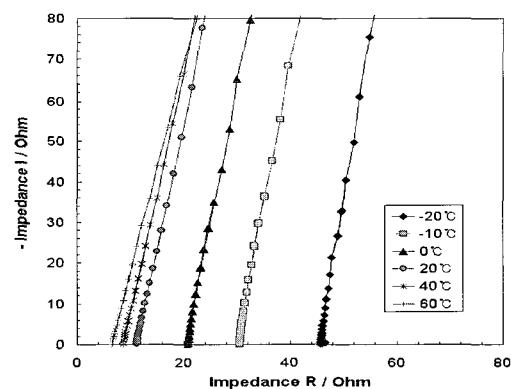


그림 2. SS/GPE/SS의 AC 임피던스 스펙트라.

Fig. 2. AC impedance spectra of SS/GPE/SS cells with gel polymer electrolyte.

또한, 단량체 함량 및 개시제 함량에 따라 개로전 압 및 임피던스의 값은 큰 차이가 보이지 않았다.

Pre-conditioning 공정을 거친 후 리튬이온폴리머전지의 방전율에 따른 충방전특성을 측정하였으며, 이때 얻은 방전곡선을 그림 5에 나타내었다. 리튬이온폴리머전지의 0.2C의 방전율에서의 방전 용량은 약 627.4 mAh로써, 이는 정극활물질 이론 용량의 100 %에 해당하는 것이다. 방전전류가 증가함에 따라 내부저항에 따른 iR 강하로 방전용량이 약간 감소하였다. 그러나, 2C라는 고율의 방전 전류에서도 리튬이온폴리머전지의 방전용량은 약 609.3 mAh로써 0.2C 방전용량 대비 약 97.2 %로 높은 값을 나타내었다. 높은 전류에서 방전용량이 약간 감소한 것은 젤폴리머전지에서 리튬이온의 화산속도가 낮고 또한 함침이 잘 이루어지지 않았기 때문으로 사료된다[13].

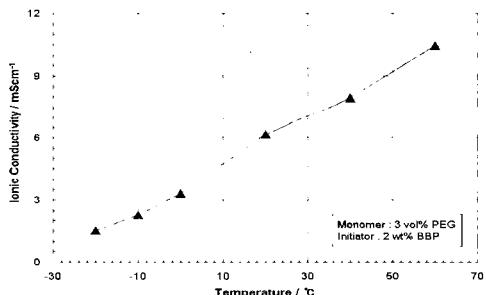


그림 3. 젤폴리머전해질의 온도에 따른 이온전도도 변화.

Fig. 3. Ionic conductivity of the gel polymer electrolyte at various temperatures.

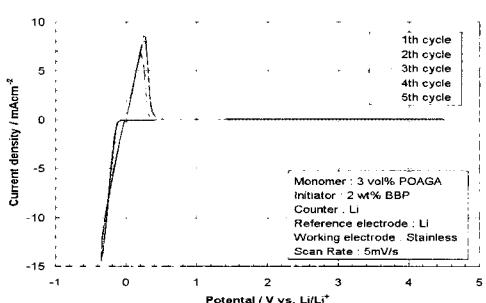


그림 4. 젤폴리머전해질의 cyclic voltammogram.

Fig. 4. Cyclic voltammograms of the gel polymer electrolyte on SS working electrode.

리튬이온폴리머전지의 온도에 따른 방전특성도 평가하였으며, 이때 얻은 방전곡선을 그림 6에 나타내었다. 온도가 감소함에 따라 리튬2차전지의 방전용량은 감소하였다. 0 °C에서의 방전용량은 약 610.0 mAh로 상온 방전용량의 약 96.8 %를 나타냈으며, -20 °C에서의 방전용량은 523.1 mAh로 상온 대비 약 83.0 %를 나타내었다.

그림 7은 POAGA계 젤폴리머전해질을 적용한 리튬이온폴리머전자를 1C의 전류율로 충방전하였을 때의 방전용량 및 용량유지율을 나타낸 것이다. 300사이클 경과 후 전지의 방전용량은 약 551.4 mAh로 이는 초기용량의 89.5 %에 상당하는 것으로 매우 양호한 사이클 특성을 나타내었다. 약 300

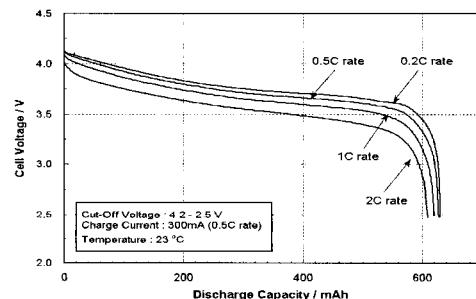


그림 5. POAGA계 젤폴리머전해질을 채용한 리튬이온폴리머전지의 방전전류에 따른 방전곡선.

Fig. 5. Typical discharge curves obtained at various current rates for LiCoO₂/GPE/graphite cells at 23 °C.

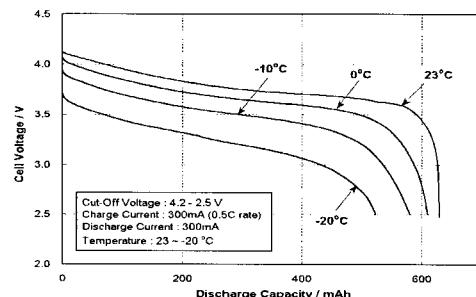


그림 6. POAGA계 젤폴리머전해질을 채용한 리튬이온폴리머전지의 온도에 따른 방전곡선.

Fig. 6. Typical discharge curves obtained at 0.5 C rate for LiCoO₂/GPE/graphite cell at various temperatures.

회의 충방전 사이클이 경과된 후, 리튬이온폴리머 전지를 해체하여 관찰한 결과, 정극은 분리막과 강하게 밀착되어 있었으나, 부극과 분리막간의 결착력은 미약하고 부극 표면에 수지상의 리튬이 석출되어 있었다. 이는 전지 특성에 악영향을 미치게 되므로 향후 개선하여야 할 연구 분야이다.

또한, POAGA계 겔폴리머전해질을 적용한 리튬2타전지의 충방전 수명은 단량체 함량이 증가할수록 열화하였다. 이것은 율특성에서도 알 수 있듯이 전극, 분리막 및 겔폴리머전해질간의 계면저항에 의한 분극때문인 것으로 사료된다. 그리고, 개시제 함량에 따른 충방전 수명은 개시제 함량이 작거나 많을수록 충방전 특성이 우수하다. 이것은 개시제 함량이 작은 경우는 전극 내부에 미반응 액체 성분이 많이 존재하기 때문인 것으로 생각되며, 개시제 함량이 6 wt%인 경우는 단량체와 개시제가 반응이 잘 되어 전극 및 분리막간의 계면저항에 의한 분극 현상으로 인하여 수명 특성이 열화된 것으로 생각된다.

그림 8은 POAGA계 겔폴리머전해질을 적용한 리튬이온폴리머전지를 1C의 전류율로 과충전시험을 했을 때 얻은 전압 및 온도곡선이다. 리튬이온폴리머전지에서 전지전압이 약 4.5 V를 초과하면 부극 표면에 리튬금속이 석출되기 시작하며, 약 5 V 근방에서 전해액이 분해되기 시작한다. 이때 전압이 일시적으로 감소하다가 약 47분이 경과한 후 전압은 다시 급격하게 증가하였다. 한편 전지의 외부온도는 전지전압이 약 4.5 V 이상부터 증가하기 시작하였으며 약 70 °C에서 피크를 보인 후 다시 증가하였다. 전지전압이 12 V에 도달하면 과충전시험을 종료하였으며 이때의 온도는 약 82 °C였다.

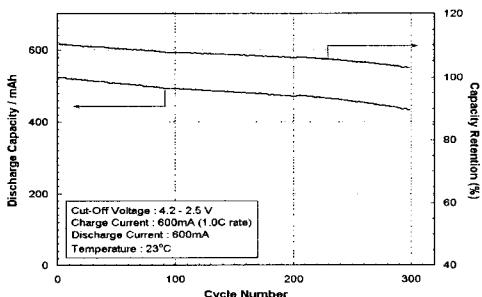


그림 7. POAGA계 겔폴리머전해질을 채용한 리튬이온폴리머전지의 사이클 특성.

Fig. 7. Capacity change upon cycling at 1C rate for LiCoO₂/GPE/graphite cell at 23 °C.

이때 전지의 외부온도는 82 °C이나, 내부는 이보다 더 고온으로 분리막의 shutdown 현상에 의해 분리막 내부의 pore가 폐쇄되어 저항이 증가하여 더 이상의 전류 흐름을 차단시킨 것으로 판단된다. 또한 전지의 최고온도가 82 °C 정도로 그다지 높지 않기 때문에 양극의 분해반응은 없다고 판단된다. 따라서 겔폴리머전해질형 리튬2차전지는 우수한 안전성을 갖는 것을 알 수 있었다.

그림 9에는 전지의 안전성 평가방법의 하나로 만충전된 전지의 중심을 직경 5 mm의 침으로 관통하는 관통시험 후의 전지 사진을 나타낸 것이다. 관통시험 후에는 발연 및 발화가 없어야 하고, 전지의 외부온도가 100 °C 이하가 되어야 요구조건을 만족하는 것이다. 그림에서 알 수 있듯이 리튬이온폴리머전지는 관통시험을 하여도 발연 및 발화가 없었으며, 온도도 100 °C 이하였다. 따라서 리튬이온폴리머전지는 전지특성뿐만 아니라 안전성도 우수하였다.

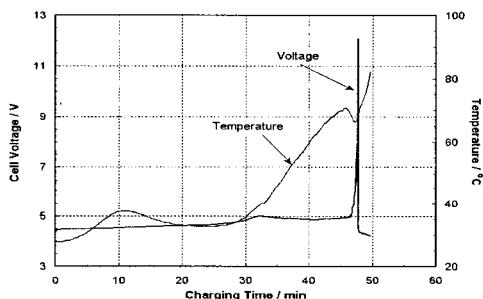


그림 8. 리튬이온폴리머전지의 과충전에 따른 전압 및 온도곡선.

Fig. 8. Voltage and temperature profiles of lithium-ion polymer battery with overcharge test.

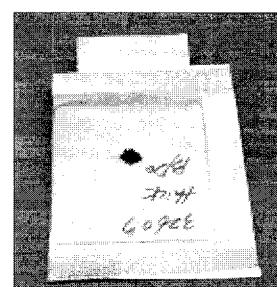


그림 9. 관통시험 후의 전지 사진.

Fig. 9. Photo of lithium-ion polymer battery after nail penetration test.

4. 결 론

POAGA계 겔폴리머전해질을 적용하여 리튬이온 폴리머전지를 제작하였다. POAGA계 겔폴리머전해질의 상온 이온전도도는 약 $6.2 \times 10^{-3} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 였다. POAGA계 겔폴리머전해질은 약 4.5 V (vs. Li/Li⁺)까지의 전위 영역에서 전기화학적으로 안정하였다. POAGA계 겔폴리머전해질을 적용하여 리튬이온폴리머전지는 2C의 방전율에서 609.3 mAh의 방전용량을 나타내어 0.2C 방전용량 대비 약 97.2 %로 매우 양호하였다. -20 °C에서의 방전용량은 523.1 mAh로 상온 대비 약 83.0 %를 나타내었다. 300사이클 경과 후 전지의 방전용량은 약 551.4 mAh로 이는 초기용량의 89.5 %에 상당하는 것으로 매우 양호한 사이클 특성을 나타내었다. 또한 리튬이온폴리머전지는 과충전 및 관통시험에서도 발연 및 발화현상이 없고 안전성도 높았다.

참고 문헌

- [1] K. M. Abraham and M. Alamgir, "Li⁺-conductive solid polymer electrolytes with liquid-like conductivity", *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 137, No. 5, p. L1657, 1990.
- [2] F. Boudin, X. Andrieu, C. Jehoulet, and I. I. Olsen, "Microporous PVdF gel for lithium batteries", *J. Power Sources*, Vol. 81-82, p. 804, 1999.
- [3] B. Scrosati, F. Croce, and L. Persi, "Impedance spectroscopy study of PEO-based nonocomposite polymer electrolytes", *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 147, No. 5, p. 1718, 2000.
- [4] 김종욱, 문성인, 진봉수, 구할본, 윤문수, "이온전도성 Poly(ethylene oxide) 고분자전해질의 전도특성", 전기전자재료학회논문지, 8권, 4호, p. 412, 1995.
- [5] H. Kim, J. Shin, S. Moon, and S. Kim, "Preparation of gel polymer electrolytes using pmma interpenetrating polymeric network and their electrochemical performances", *Electrochim. Acta*, Vol. 48, No. 11, p. 1573, 2003.
- [6] V. Arcella, A. Sanguineti, E. Quartane, and P. Mustarelli, "Vinylidenefluoride-hexafluoro-propylene copolymers as hybrid electrolyte components for lithium batteries", *J. Power Sources*, Vol. 81-82, p. 790, 1999.
- [7] H. Kim, J. Shin, S. Moon, and M. Yun, "Electrochemical properties of poly(tetra ethylene glycol diacrylate) based gel electrolytes for lithium-ion polymer batteries", *J. Power Sources*, Vol. 119-121, p. 482, 2003.
- [8] H. Kim, J. Shin, C. Doh, S. Moon, and S. Kim, "Preparation of gel polymer electrolytes using tri(ethylene glycol) dimethacrylate and their electrochemical performances", *J. Power Sources*, Vol. 112, No. 2, p. 469, 2002.
- [9] H. Kim, G. Choi, S. Moon, and S. Kim, "Electrochemical properties of Li ion polymer battery with gel polymer electrolyte based on polyurethane", *J. Applied Electrochem.*, Vol. 33, No. 6, p. 491, 2003.
- [10] 김현수, 김성일, 최관영, 문성인, 김상필, "리튬이온전지용 Urethane기 겔폴리머전해질에 관한 연구", 전기전자재료학회논문지, 15권, 12호, p. 1033, 2002.
- [11] M. Kono, E. Hayashi, and M. Watanabe, "Preparation, mechanical properties, and electrochemical characterization of polymer gel electrolytes prepared from poly(alkylene oxide) macromonomers", *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 146, No. 5, p. 1626, 1999.
- [12] 김현수, 신정한, 문성인, 오대희, "Ethylene oxide기를 갖는 Acrylate계 Gel Polymer Electrolyte의 전기화학적 특성에 관한 연구", 전기전자재료학회논문지, 17권, 6호, p. 608, 2004.
- [13] D. W. Kim, "Electrochemical characterization of poly(ethylene-co-methyl acrylate)-based gel polymer electrolytes for lithium-ion polymer batteries", *J. Power Sources*, Vol. 87, No. 1-2, p. 78, 2000.