

## 하이브리드 물질 시스템을 통한 실리콘 음극재의 부피 팽창 완화

권태균<sup>†</sup>

청주대학교 에너지융합공학과  
27739 충청북도 음성군 맹동면 태정로 111  
(2025년 10월 18일 접수, 2025년 12월 10일 수정본 접수, 2025년 12월 11일 채택)

### Mitigating Volume Expansion in Silicon Anodes via Hybrid Material Systems

Kwon Taeyun<sup>†</sup>

Energy Convergence Engineering, Cheongju University  
111 Taejeong-ro, Maengdong-myeon, Eumseong-gun, Chungcheongbuk-do, 27739, Korea  
(Received 18 October 2025; Received in revised from 10 December 2025; Accepted 11 December 2025)

#### 요 약

실리콘(Si)은 흑연보다 10배 이상 높은 이론적 용량(~4200 mAh/g)을 지닌 차세대 리튬 이온 배터리 음극재로 주목 받고 있으나, 충방전 과정에서 400%에 달하는 부피 팽창으로 인해 입자 균열, 집전체 박리, 불안정한 고체 전해질 계면(SEI) 형성 등 심각한 열화 문제가 발생한다. 이를 해결하기 위해 실리콘은 다양한 하이브리드 재료 시스템과 결합 되어 연구되고 있다. 본 논문은 실리콘-탄소, 실리콘-금속 산화물, 실리콘-2차원(2D) 재료, 실리콘-전도성 고분자 복합체의 구조적·전기화학적 특성을 종합적으로 고찰하였다. 하이브리드 시스템은 전기 전도성 향상, 부피 팽창 완화, SEI 안정화, 기계적 강도 유지 등에서 시너지 효과를 발휘하며 실리콘 음극의 성능을 크게 개선한다. 특히 요크-셸(yolk-shell) 구조와 다중 셸 설계는 장기 사이클 안정성 향상에 핵심적 역할을 한다. 그러나 낮은 초기 쿨롱 효율(ICE), 복잡한 제조 공정 및 확장성 한계가 여전히 상용화의 주요 과제로 남아 있다. 향후 연구는 공정 단순화, 표면 공학, 비 용 효율적 하이브리드 구조 설계를 통해 실리콘 음극의 실질적 상용화를 가속화하는 데 초점을 두어야 한다.

**Abstract** – Silicon (Si) is a promising next-generation anode for lithium-ion batteries (LIBs) owing to its high theoretical capacity (~4200 mAh g<sup>-1</sup>) and low operating potential. However, severe volume expansion during cycling causes cracking, delamination, and unstable SEI formation. To address these challenges, hybrid systems combining Si with carbon, metal oxides, two-dimensional (2D) materials, or conductive polymers have been developed. These systems enhance electrical conductivity, buffer structural stress, and stabilize SEI layers. In particular, yolk-shell and multi-shell architectures effectively accommodate large volume changes and improve cycling stability. Despite significant progress, low initial coulombic efficiency (ICE), complex synthesis, and limited scalability hinder commercialization. Advances in scalable fabrication and surface engineering are essential for practical Si-based high-energy LIBs.

Key words: Silicon anode, Lithium-ion batteries, Hybrid material systems, Volume expansion mitigation, Interface stabilization

### 1. 서 론

#### 1-1. 실리콘 음극의 잠재력과 과제

현대 사회의 에너지 전환에서 리튬 이온 배터리(LIB)는 중심적인 역할을 수행하지만, 현재 상용화된 흑연 음극은 이론적 용량 한계(372 mAh/g)에 도달하여 에너지 밀도 향상에 주요한 장애물이 되고

있다[1]. 이 한계를 극복하고자 연구자들은 실리콘(Si), 주석(Sn), 금속 산화물과 같은 고용량 음극 활물질을 적극적으로 연구하고 있다[2,3].

특히 실리콘은 흑연보다 10배 이상 높은 이론적 용량(~4200 mAh/g), 비교적 낮은 작동 전위, 풍부한 매장량과 환경 친화성 덕분에 가장 유망한 차세대 음극재로 주목받는다[4-6]. 하지만 실리콘 음극은 리튬 이온과의 합금 및 탈합금 반응 중 발생하는 극심한 부피 팽창(최대 400%)이라는 심각한 기술적 과제를 안고 있다[7,8].

이러한 부피 팽창은 상당한 기계적 응력을 유발하여 활물질 입자의 균열과 분쇄를 초래하며[9,10], 집전체와의 부착력을 약화시켜 박리를 일으킨다[11]. 또한, 새롭게 노출된 표면에서 두껍고 불안정한 고체

<sup>†</sup>To whom correspondence should be addressed.

E-mail: tgkwon@cju.ac.kr

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

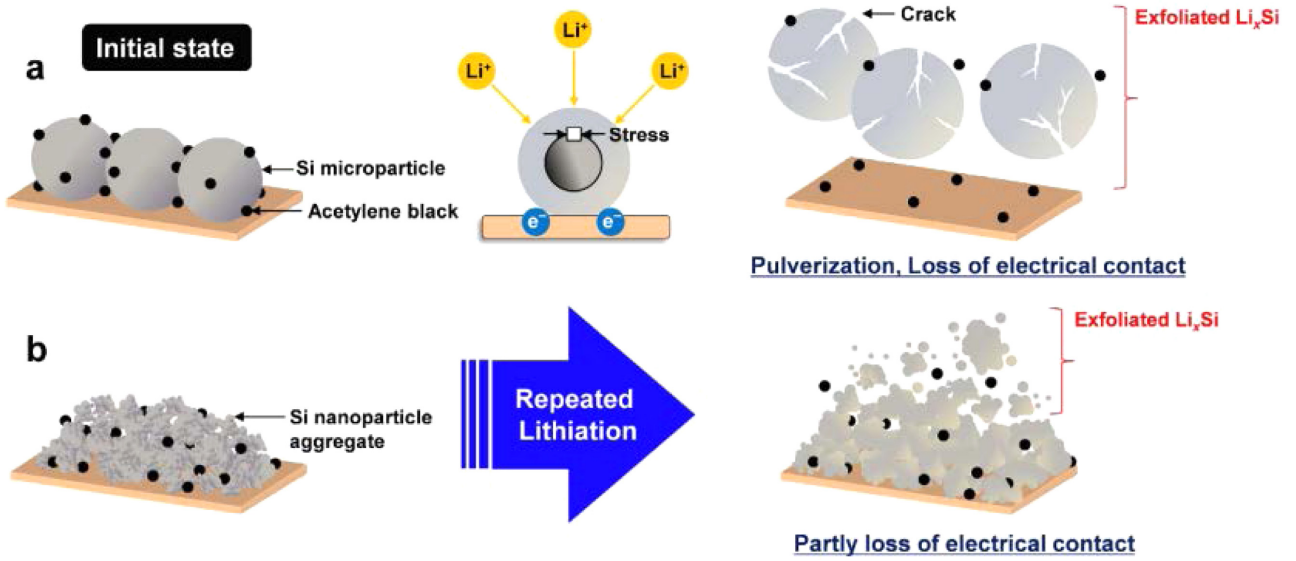


Fig. 1. Schematic illustration of morphological changes in Si active materials during the charge/discharge process. (a) Si microparticles and (b) Si nanoparticle aggregates. Reproduced from ref. [9], licensed under CC BY 4.0 (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>); no changes made.

전해질 계면(SEI) 층이 계속 형성되면서 이온의 이동을 방해하고 용량 손실을 유발한다[12]. 이 복합적인 문제들은 결국 사이클 수명과 전기 전도도를 심각하게 저하시켜 상용화에 큰 걸림돌이 된다[13].

따라서 부피 팽창을 제어하고 관련된 부수적인 문제들을 완화하기 위한 혁신적인 해결책이 시급히 요구된다. 나노 구조화, 하이브리드화, 표면 개질 등 다각적인 접근법이 실리콘 음극의 잠재력을 극대화하기 위한 핵심 연구 방향으로 주목받고 있다[14,15]. 더불어, 낮은 초기 쿨롱 효율(ICE) 또한 해결해야 할 중요한 과제이며, 최근 다공성 SiO<sub>x</sub>@C 복합재의 사진 리튬화 기술이 이 문제에 대한 유망한 해결책으로 제시되었다[16].

## 1-2. 하이브리드 재료 시스템의 개념과 원리

### 1-2-1. 하이브리드 재료 시스템의 정의

하이브리드 재료 시스템은 나노미터 또는 마이크로미터 수준에서 두 가지 이상의 다른 재료를 결합하여 단일 구성 요소만으로는 제공할 수 없는 향상된 특성을 달성하는 시스템이다 [17,18]. 이러한 시스템은 각 구성 재료의 장점을 극대화하는 동시에 시너지 효과를 통해 개별적인 단점을 보완한다[19].

실리콘 음극에서 하이브리드 재료 시스템은 부피 팽창 문제를 해결하기 위한 핵심적인 해결책을 제공한다[20]. 실리콘은 높은 이론적 용량을 가지지만, 극심한 부피 팽창으로 인해 균열, 박리, 불안정한 SEI 형성, 용량 및 전도성 손실이 발생한다[16]. 하이브리드 시스템은 기계적 완충 및 전도성 향상을 제공하는 Si/C 복합재, 우수한 전기적 경로와 구조적 지지를 제공하는 Si/그래핀 시스템, 그리고 사이클 동안 전극 무결성을 유지하는 Si/고분자 바인더 조합과 같은 다각적인 해결책을 통해 이러한 문제들을 완화한다. 이러한 접근법들은 실리콘 음극 상용화를 위한 핵심 기술 전략을 대표한다[21].

1-2-2. 실리콘 음극에서 하이브리드 재료 시스템의 작동 메커니즘  
하이브리드 재료 시스템은 순수 실리콘의 근본적인 한계를 극복하기 위해 시너지 효과를 내는 네 가지 핵심 메커니즘을 통해 실리콘 음극의 과제를 해결한다[22,23].

첫째, 부피 팽창 완화가 가장 중요한 기능이다. 탄소 셸이 실리콘 나노입자를 감싸는 코어-셸 구조는 팽창을 물리적으로 억제하며[24], 의도적으로 빈 공간을 둔 오크-셸 구조는 전극 변형 없이 실리콘이 팽창할 수 있는 공간을 제공한다[25].

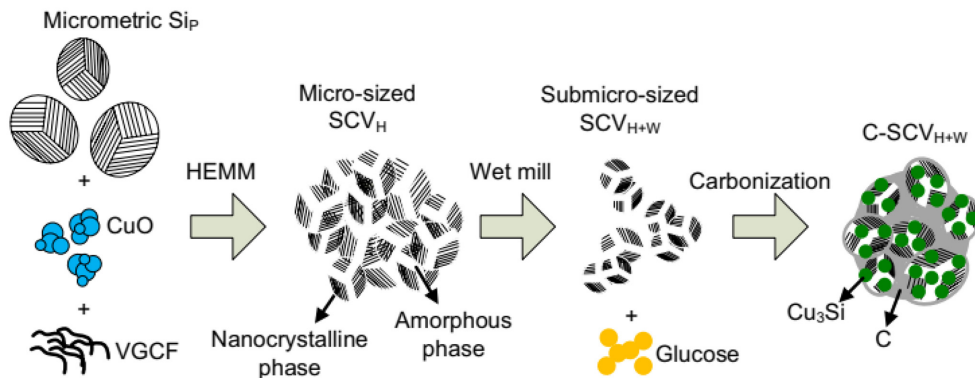


Fig. 2. Schematic illustration of the synthesis process for Si/Cu<sub>3</sub>Si-based composite powders. Reproduced from ref. [20], licensed under CC BY 4.0 (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>); no changes made.

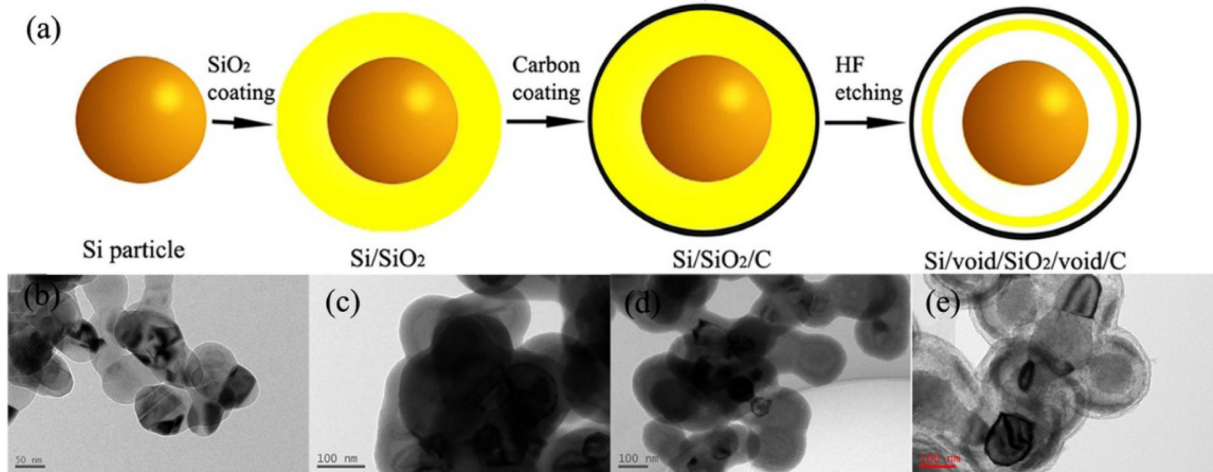


Fig. 3. (a) Schematic illustration of the fabrication process of the double yolk-shell structure. (b), (c), (d), and (e) TEM images corresponding to Si, Si/SiO<sub>2</sub>, Si/SiO<sub>2</sub>/C, and Si/void/SiO<sub>2</sub>/void/C spheres, respectively. Reproduced from ref. [25], licensed under CC BY 4.0 (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>); no changes made.

둘째, 전기 전도성 향상이다. 그래핀, 탄소나노튜브(CNT), 비정질 탄소와 같은 탄소 기반 재료는 실리콘 입자와 집전체 사이에 전자 경로를 제공하는 전도성 매트릭스 역할을 한다[26,27]. 전도성 고분자 및 특정 금속 산화물 또한 전도성 향상에 기여하여, 실리콘 입자가 겪는 급격한 부피 변화 중에도 연결성을 유지하는 견고한 전기

네트워크를 생성한다[28].

셋째, 고체 전해질 계면(SEI)의 안정화이다. 탄소, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub>를 포함한 보호 코팅층은 실리콘과 전해질의 직접적인 접촉을 막아 SEI 형성을 안정화하고 전해질 소모를 줄인다[25,29,30]. 이 접근법은 초기 쿨롱 효율(ICE)과 사이클 안정성을 향상시키며[31,32], 불소화된

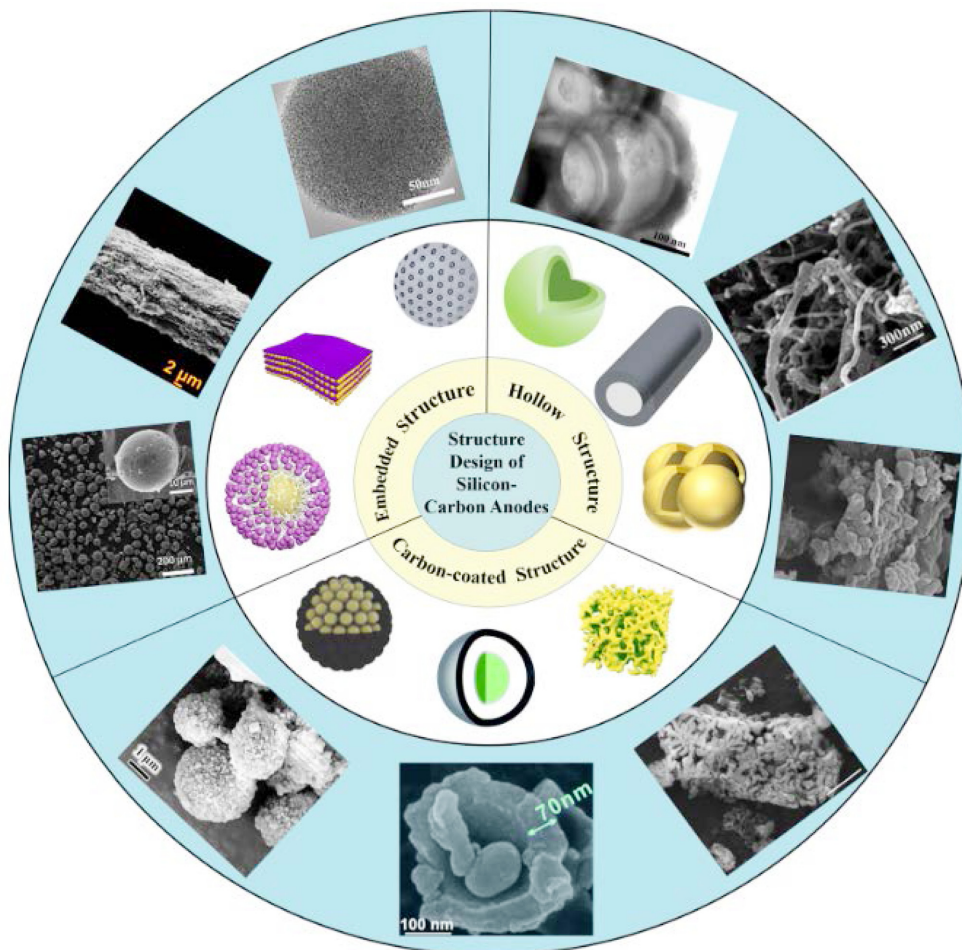


Fig. 4. Schematic illustration of various structural designs of Si/C composites as anodes for lithium-ion batteries. Reproduced from ref. [44], licensed under CC BY 4.0 (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>); no changes made.

MXene 코팅과 같은 고급 접근법은 LiF가 풍부한 안정적인 SEI 층을 생성한다[33].

SEI 안정화는 하이브리드 시스템의 핵심 기능 중 하나로, 다양한 전략을 통해 구현된다.  $Al_2O_3$ ,  $TiO_2$ 와 같은 금속 산화물 코팅은 원자층 증착(ALD)과 같은 정밀한 공정을 통해 실리콘 표면에 균일한 보호층을 형성한다[34-36]. 이 보호층은 물리적 장벽 역할을 하여 실리콘과 전해질의 직접적인 접촉을 차단하고, 부반응을 억제하여 안정적인 SEI 형성을 유도한다. 특히, LiF는 우수한 이온 전도성과 낮은 전자 전도성을 가져 이상적인 SEI 구성 요소로 알려져 있는데, 불소화 에틸렌 카보네이트(FEC)나 리튬 비스(플루오로설포닐)이미드(LiFSI)와 같은 전해질 첨가제는 SEI 내 LiF 함량을 높여 안정성을 크게 향상시킨다[37]. 최근에는 불소화된 MXene과 같은 하이브리드 재료를 도입하여 LiF가 풍부한 SEI를 의도적으로 형성하는 연구가 활발히 진행되고 있다[38]. 또한, 카르복시메틸 셀룰로오스(CMC)와 같은 기능성 바인더는 실리콘 표면의 수산화기(-OH)와 강한 수소 결합을 형성하여 전극의 기계적 안정성을 확보할 뿐만 아니라, SEI 안정화에도 기여한다[39]. 이러한 다각적인 접근은 하이브리드 시스템과 전해질/바인더 공학의 시너지를 통해 SEI의 화학적 조성과 기계적 특성을 최적화하여 실리콘 음극의 장기적인 사이클 안정성을 확보하는 데 핵심적인 역할을 한다.

마지막으로, 기계적 안정성 향상이 장기간의 사이클 동안 전극 무결성을 유지하는 데 중요한 역할을 한다. 탄소 매트릭스와 금속 산화물 셀은 실리콘에 비해 우수한 기계적 강도와 유연성을 제공하여

입자 분해를 방지하고 강한 계면 상호작용을 통해 전극 무결성을 유지한다[13,26,40].

## 2. 하이브리드 재료 시스템의 유형과 특성

### 2-1. 실리콘-탄소 하이브리드 시스템

탄소 기반 재료는 우수한 전기 전도성, 높은 기계적 및 화학적 안정성, 구조 제어의 다양성 덕분에 실리콘 음극의 성능을 향상시키기 위한 하이브리드 파트너로 가장 널리 연구되고 있다. 실리콘과 탄소의 조합으로 이루어진 하이브리드 시스템은 다방면의 이점을 제공한다. 탄소 매트릭스는 실리콘의 부피 팽창을 효과적으로 완충하고, 우수한 전기 전도 경로를 제공하며, 안정적인 SEI 층 형성을 촉진한다.

대표적인 실리콘-탄소 하이브리드 시스템에는 그래핀[41], 탄소나노튜브(CNT)[42], 탄소나노섬유(CNF)[43]와의 복합체가 있다. 이러한 구조는 크게 실리콘이 탄소 매트릭스에 분산된 내장형 구조(Embedded Structures), 코어-셸 디자인을 특징으로 하는 탄소 코팅 구조(Carbon-coated Structures), 그리고 빈 공간을 포함하는 중공 구조(Hollow Structures)로 분류할 수 있다[44].

그래핀은 뛰어난 전기 전도성, 넓은 비표면적, 우수한 기계적 강도와 유연성을 가진 2차원 탄소 재료로서 실리콘과의 하이브리드화에 이상적인 재료로 주목받고 있다[45]. 그래핀 시트로 실리콘 나노입자를 감싸거나, 그래핀 시트 사이에 실리콘 입자를 삽입하는 샌드위치 구조, 또는 3차원 그래핀 네트워크 내에 실리콘을 분산시키는

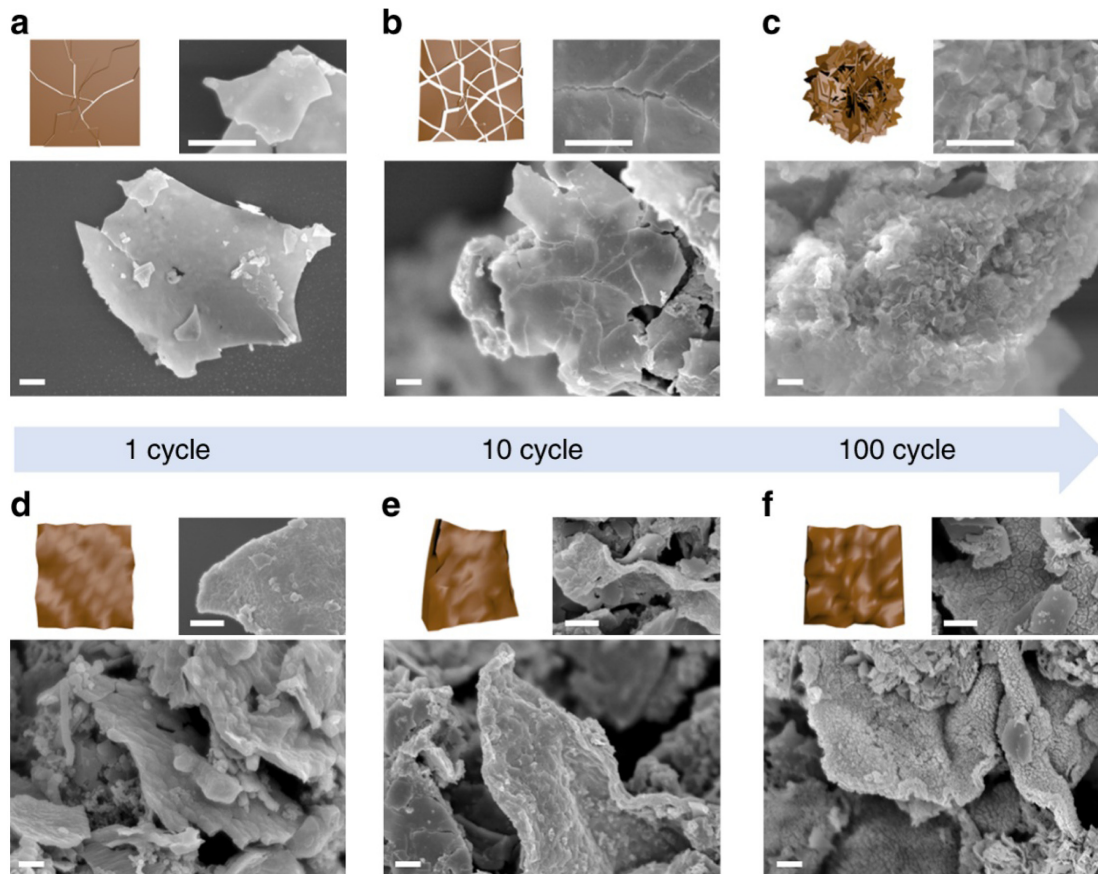


Fig. 5. Morphological evolution of a single sheet. (a–c) 2D Si and (d–f) 2D Si@C, where graphene encapsulates silicon, after 1, 10, and 100 cycles, respectively. Scale bar: 1  $\mu$ m. Reproduced from ref. [49], licensed under CC BY 4.0 (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>); no changes made.

등 다양한 구조가 연구되었다[46]. 그래핀은 실리콘의 부피 팽창을 효과적으로 수용하고, 입자 응집을 방지하며, 빠른 전자 전달 경로를 제공하여 높은 용량과 우수한 사이클 및 속도 특성을 구현한다[47]. 예를 들어, 화학 기상 증착(CVD)을 이용해 3차원 다공성 그래핀 폼에 실리콘을 증착하여 제작된 하이브리드 전극은 높은 가역 용량과 장기 사이클 안정성을 보였다[48].

탄소나노튜브(CNT)는 높은 종횡비, 우수한 전기 전도성 및 기계적 강도를 가진 1차원 탄소 재료로서 실리콘 하이브리드에 활발히 적용되고 있다. CNT는 실리콘 입자 주위에 얽힌 네트워크를 형성하여 효과적인 전자 전달 경로를 제공하고, 실리콘의 부피 변화 시 누적되는 기계적 응력을 분산시킨다. 또한, CNT 네트워크는 전극 내 활물질, 도전재, 바인더 간의 접착력을 강화하여 전극의 구조적 안정성을 향상시키는 데 기여한다[50]. CNT 표면에 실리콘 나노입자를 직접 성장시키거나 실리콘과 CNT를 혼합하여 복합체를 제조하는 방법 등이 사용되며, CNT를 활용한 하이브리드 전극은 향상된 속도 특성과 사이클 안정성을 나타내는 것으로 보고되었다[51].

Table 1은 다양한 실리콘-탄소 하이브리드 시스템의 전기화학적 성능을 정리한 것이다. 표에서 확인할 수 있듯이, 탄소 기반 하이브리드 시스템은 전류 밀도, 사이클 수명, 잔존 용량 측면에서 다양한 성능을 보인다. 특히 Meso-Si/C는 1.0 A/g의 전류 밀도에서 1000 사이클 후에도 990 mAh/g의 용량을 유지하여 우수한 장기 사이클 안정성을 나타냈으며 [52], M-pSi@C는 250 사이클 후 1702 mAh/g의 높은 용량을 보여 탄소 매트릭스의 효과적인 완충 작용을 입증하였다 [53]. 이러한 정량적 데이터는 탄소 기반 하이브리드 시스템이 실리콘 음극의 부피 팽창 문제를 완화하고 전기화학적 성능을 향상시키는 데 효과적임을 명확히 보여준다.

**2-2. 실리콘-금속 산화물 하이브리드 시스템**

탄소 기반 재료 외에도, 다양한 금속 산화물(MO<sub>x</sub>)이 실리콘 음극의 성능을 개선하기 위한 하이브리드 파트너로 활발히 연구되고 있다[54]. 금속 산화물은 화학적 조성에 따라 반도체, 절연체 또는 이온 전도체 특성을 나타내며, 일부는 자체적인 리튬 저장 능력을 보유하고 있다 [55]. 실리콘과 금속 산화물의 하이브리드화는 여러 면에서 이점을

제공한다. 금속 산화물 층은 실리콘의 부피 팽창을 완충하는 기계적 보호막 역할을 하거나, SEI 형성을 안정화하는 표면 개질 효과를 제공하며, 경우에 따라 추가적인 용량을 제공하기도 한다. 대표적으로 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [54-57], SnO<sub>2</sub> [58-60], TiO<sub>2</sub> [61-62] 등이 실리콘과의 하이브리드 시스템에 도입되었다.

산화철(Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)은 높은 이론적 용량(약 1007 mAh/g)을 가진 변환 반응 기반 음극 활물질로서, 실리콘과 복합화될 경우 전극의 전체 용량을 높이는 데 기여할 수 있다[54]. 그러나 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 자체도 충방전 중 상당한 부피 변화를 겪고 전기 전도도가 낮아, 탄소 코팅 등을 추가로 도입하여 전기 전도성과 구조적 안정성을 확보하려는 연구가 병행되고 있다[56,57].

이산화주석(SnO<sub>2</sub>) 또한 합금 반응을 기반으로 높은 이론적 용량(약 782 mAh/g)을 갖는 음극 활물질로 사용되어 왔으며, 실리콘과의 하이브리드화를 통해 전극의 에너지 밀도를 높일 수 있다. SnO<sub>2</sub>는 실리콘보다 전기 전도도가 우수하여 복합화 시 향상된 전자 전달 효과를 기대할 수 있다[58]. 하지만 SnO<sub>2</sub> 역시 충방전 시 상당한 부피 변화를 겪기 때문에 나노구조화나 탄소 복합화를 통해 구조적 안정성을 확보하는 것이 중요하다[59,60].

이산화티타늄(TiO<sub>2</sub>)은 화학적 안정성, 우수한 기계적 강도, 그리고 비교적 양호한 리튬 이온 전도성으로 알려져 있다. 실리콘 나노입자를 얇은 TiO<sub>2</sub> 층으로 코팅하거나[61], TiO<sub>2</sub> 나노구조체에 실리콘을 삽입하는 하이브리드 구조가 연구되었다[62]. TiO<sub>2</sub> 코팅층은 실리콘 표면과 전해질의 직접적인 접촉을 막아 부반응을 억제하고 안정적인 SEI 형성을 유도한다. 또한, 실리콘의 부피 팽창으로 인한 구조적 파괴를 완화하는 데 기여하는 기계적 완충층 역할을 한다.

Table 2는 실리콘-금속 산화물 하이브리드 시스템의 전기화학적 성능을 요약한 것이다. 금속 산화물 코팅은 SEI 안정화와 기계적 보호 효과를 통해 실리콘 음극의 성능을 향상시킨다. 특히 Si@SnO<sub>2</sub>는 200 사이클 후 1926 mAh/g의 매우 높은 용량을 유지하였으며[63], Si/Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>@rGO는 금속 산화물과 그래핀을 결합한 3원 하이브리드 구조로 200 사이클 후 1744.5 mAh/g의 우수한 성능을 보였다[56]. TiO<sub>2</sub> 기반 시스템들(Si@a-TiO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>/SiNWs)은 1700 mAh/g 이상의 높은 용량을 나타내어 TiO<sub>2</sub> 코팅의 효과적인 SEI 안정화 효과를 일

**Table 1. Electrochemical Performance of Silicon-Carbon Hybrid Systems**

Si Anodes	Current Density (A/g)	Cycle Number	Remaining Capacity (mAh/g)	Source (1st Author, Year)
Si/C	0.1	100	941.1	Zhang, 2023
Si/C	0.5	100	605.43	Li, 2023
Si/C	2.0	400	1283	Ma, 2023
Si@C@void@C	0.5	50	1366	Xie, 2017
Meso-Si/C	1.0	1000	990	Xu, 2016
Si/graphite/C	0.5	300	~400	Wang, 2016
M-pSi@C	1.0	250	1702	Su, 2023
Porous Si/C nanotubes	0.2	200	1300	Chen, 2017
Si/C/graphene	0.2	100	760	Wu, 2015
Si/rGO	0.1	100	1433	Liu, 2015
Si/CNTs	5.0	1000	612.3	Guo, 2024
Si/CNTs	10	100	800	Gohier, 2012
Si@(POH-AOCNTs)	1.0	500	1195.8	Liu, 2024
Si@CNFs	1.0	100	658.1	Zhang, 2025
cpDOPA-crGO-Si	1.0	200	1038	She, 2021
HPC/Si@C	2.0	500	358	Cao, 2024
SiO <sub>2</sub> @NPC Y.S.	0.1	300	705	Min, 2022

**Table 2. Electrochemical Performance of Silicon-Metal Oxide Hybrid Systems**

Si Anodes	Current Density (A/g)	Cycle Number	Remaining Capacity (mAh/g)	Source (1st Author, Year)
Porous Si/Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.2	100	697.2	Chen, 2020
Si@SnO <sub>2</sub>	0.2	200	1926	Zhu, 2022
Si@a-TiO <sub>2</sub>	0.42	200	1720	Yang, 2017
Si/TiO <sub>2</sub>	0.1	100	1010.7	Li, 2016
TiO <sub>2</sub> /SiNWs	0.1	100	~1700	Lotfabad, 2013
SiO/Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.16	50	1335	Zhou, 2013
Si/Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> @rGO	0.2	200	1744.5	Yan, 2021
Si@Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /C	1.0	300	680.7	Wang, 2019
Si-SnO <sub>2</sub> -graphene	0.1	20	350	Li, 2017
TiGL@Si	1.0	350	1200	Huertas, 2022

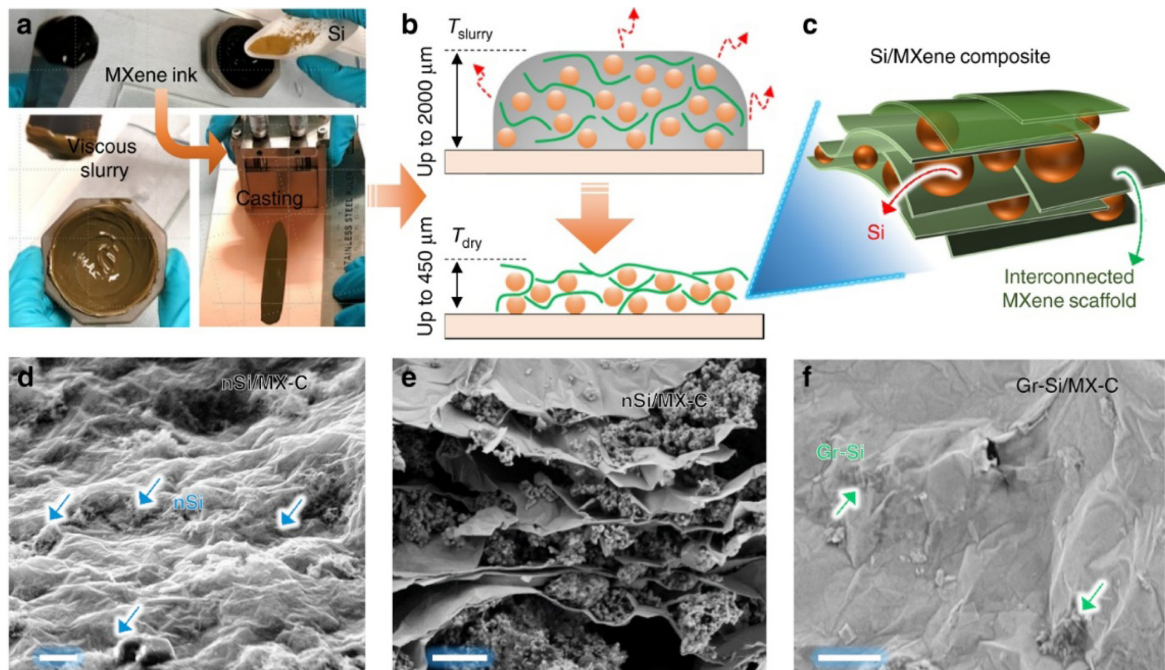
증하였다[64,65]. 이러한 데이터는 금속 산화물이 실리콘의 부피 팽창을 완충하고 계면 안정성을 향상시키는 데 중요한 역할을 함을 보여준다.

최근 실리콘 기반 음극재 연구에서 아산화규소(SiO<sub>x</sub>, 0 < x < 2)가 핵심적인 하이브리드 파트너로 부상하고 있다[66-68]. SiO<sub>x</sub>는 충방전 과정에서 Li<sub>2</sub>O와 리튬 실리케이트(Li<sub>x</sub>SiO<sub>y</sub>) 비활성 매트릭스를 형성하는데, 이 매트릭스가 실리콘의 부피 팽창을 효과적으로 완충하는 역할을 한다[69]. 또한, 생성된 Li<sub>2</sub>O는 초기 비가역 용량의 원인이 되지만, 동시에 구조적 안정성을 부여하여 장기적인 사이클 수명을 향상시키는 이중적인 역할을 수행한다[70]. SiO<sub>x</sub>는 순수 실리콘에 비해 초기 쿨롱 효율이 낮다는 단점이 있지만, 사전 리튬화(pre-lithiation)와 같은 전략을 통해 이를 개선하려는 연구가 활발히 진행되고 있다[71,72]. 예를 들어, 안정화된 리튬 금속 분말(SLMP)을 사용하거나 전기화학적 방법을 통해 SiO<sub>x</sub>를 사전 리튬화하면 초기 용

량 손실을 크게 줄일 수 있다[73]. 또한, SiO<sub>x</sub>를 탄소와 복합화하여 SiO<sub>x</sub>/C 구조를 형성하면 전기 전도도를 높이고 부피 팽창을 추가적으로 제어할 수 있어, SiO<sub>x</sub>의 단점을 보완하고 장점을 극대화하는 효과적인 전략으로 평가받는다[74]. 이처럼 SiO<sub>x</sub> 기반 하이브리드 시스템은 구조적 안정성과 개선된 사이클 특성을 바탕으로 실리콘 음극 상용화의 중요한 대안으로 주목받고 있다.

**2-3. 실리콘-2D 재료 하이브리드 시스템**

그래핀의 성공적인 적용 이후, 그래핀을 넘어 다양한 2차원(2D) 나노 재료들이 독특한 물리화학적 특성으로 인해 상당한 주목을 받고 있으며, 실리콘 음극의 성능을 향상시키기 위한 하이브리드 파트너로서의 잠재력이 활발히 탐구되고 있다[27,45,47]. 2D 재료는 원자 수준의 얇은 두께, 넓은 비표면적, 뛰어난 기계적 유연성 및 강도, 그리고 종류에 따라 금속성, 반도체성, 절연성 등 다양한 전기적 특



**Fig. 6. Fabrication process of composite electrodes from Si/MXene ink-based slurry. (a) Preparation of composite electrodes using Si/MXene ink-based slurry. (b) Drying process of the slurry. (c) Schematic diagram showing the formation process of the Si/MXene composite. (d) SEM image. (e) Cross-sectional SEM image. (f) SEM image (scale bar: 1  $\mu\text{m}$ ). Reproduced from ref. [75], licensed under CC BY 4.0 (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>); no changes made.**

성을 나타낸다. 이러한 유리한 특성들은 실리콘의 부피 팽창을 효과적으로 완충하고, 전자 및 이온 전달 경로를 최적화하며, 계면 안정성을 향상시킬 수 있다. 실리콘과의 하이브리드 시스템에 적용되는 대표적인 예로는 맥신(MXene)[75-77], 육방정 질화붕소(h-BN)[78,79], 전이금속 디칼코게나이드(TMD)[80,81]가 있다.

맥신(MXene)은  $M_{n+1}X_nT_x$  (M: 전이금속, X: 탄소 또는 질소,  $T_x$ : 표면 기능기)의 일반 화학식을 갖는 전이금속 탄화물 또는 질화물 계열의 2D 재료이다. 맥신은 금속 수준의 높은 전기 전도도, 친수성 표면 특성, 그리고 우수한 기계적 특성을 동시에 보유하고 있어 실리콘 음극용 하이브리드 파트너로서 큰 잠재력을 가진다[75]. 맥신 시트는 실리콘 나노입자를 감싸거나 입자들 사이에 삽입되어 부피 팽창을 완화하고 빠른 전자 전달 경로를 제공하는 역할을 한다[76]. 또한, 맥신 표면의 풍부한 기능기들은 실리콘 및 전해질과의 강한 상호작용을 유도하여 계면 안정성을 향상시키는 데 기여할 수 있다[77].

육방정 질화붕소(h-BN)는 그래핀과 유사한 2D 구조를 가지고 있지만 넓은 밴드갭을 가진 전기 절연체이다. BN은 높은 열적 및 화학적 안정성과 우수한 기계적 강도를 특징으로 한다. BN을 실리콘 음극에 적용한 연구는 주로 BN의 절연성과 안정성을 활용하여 실리콘 표면을 보호하고 SEI 형성을 제어하는 데 초점을 맞추었다[78]. 그러나 BN은 본질적으로 절연성이기 때문에 전자 전달을 방해할 수 있어, 적절한 전도성을 확보하기 위해 탄소 코팅과 같은 다른 전도성 물질과의 추가적인 복합화가 종종 필요하다[79].

전이금속 디칼코게나이드(TMD) (예:  $MoS_2$ ,  $WS_2$ )는 독특한 전기적, 광학적 특성을 가진 층상 구조를 특징으로 한다. TMD는 리튬 이온을 저장할 수 있는 추가적인 활성 사이트를 제공하고, 유연한 층상 구조가 실리콘의 부피 팽창을 완화하는 기계적 완충 역할을 할 수 있다[80]. 그러나 대부분의 TMD는 반도체성이거나 전기 전도도가 낮고, 리튬화 과정에서 상당한 부피 변화와 구조적 불안정성을 겪을 수 있다. 따라서 TMD 기반 하이브리드 시스템의 성능을 최적화하기 위해서는 탄소 재료와의 복합화 또는 나노구조 엔지니어링을 통해 전도성을 개선하고 구조적 무결성을 유지하는 것이 중요하다[81].

Table 3은 실리콘-2D 재료 하이브리드 시스템의 전기화학적 성능을 정리한 것이다. 2D 재료, 특히 MXene은 뛰어난 기계적 유연성과 높은 전기 전도도로 인해 실리콘 음극의 성능 향상에 효과적이다. Si/Mxene은 100 사이클 후 2118 mAh/g의 매우 높은 용량을 나타내어 MXene의 우수한 완충 능력과 전도성을 입증하였다[76]. 또한, Si@ $Ti_3C_2$  Mxene은 1.0 A/g의 높은 전류 밀도에서도 200 사이클 후 1342.8 mAh/g의 용량을 유지하여 우수한 속도 특성을 보였다[77]. TMD 기반 시스템인  $MoS_2$ @Si는 300 사이클이라는 장기 사이클 동안

1223 mAh/g의 안정적인 용량을 유지하여 TMD의 기계적 완충 효과를 확인할 수 있었다[80]. 이러한 데이터는 2D 재료가 실리콘 음극의 사이클 안정성과 속도 특성을 크게 향상시킬 수 있음을 보여준다.

2-4. 실리콘-전도성 고분자 하이브리드 시스템

전도성 고분자(CP)는 독특한 전기 전도성, 유연성, 가공 용이성 및 경량 특성으로 인해 실리콘 음극의 성능을 향상시키기 위한 매력적인 하이브리드 파트너로 부상하고 있다[82-86]. 전도성 고분자는 실리콘 입자를 효과적으로 캡슐화하거나 3차원 네트워크 구조를 형성하여 실리콘의 부피 팽창을 완화하는 유연한 매트릭스 역할을 할 수 있다[82,83]. 또한, 고분자 사슬을 통해 전자 및 이온 전달 경로를 제공하고, 실리콘 표면과 전해질 간의 부반응을 억제하며, 전극의 기계적 안정성을 향상시키는 데 기여한다[84,85]. 실리콘과의 하이브리드 시스템에 널리 적용된 대표적인 전도성 고분자로는 폴리아닐린(PANI) [87-91], 폴리피롤(PPy) [92,93], 그리고 PEDOT:PSS [94-96]가 있다.

폴리아닐린(PANI)은 합성이 용이하고 환경적으로 안정하며, 도핑 상태를 조절하여 전기 전도도를 조절할 수 있는 대표적인 전도성 고분자이다[87]. PANI 코팅층은 유연한 특성으로 실리콘의 부피 변화를 효과적으로 수용하고, 균열 형성을 억제하며, 전극의 구조적 무결성을 유지하는 데 도움을 준다[88].

폴리피롤(PPy) 또한 비교적 합성이 간단하고 생체 적합성이 우수하며, 양호한 전기 전도도와 환경 안정성을 가진다[92]. PPy 코팅은 실리콘의 부피 팽창을 완화하고, 입자 간의 전기적 연결성을 개선하며, 전해질 분해를 억제하여 전극의 수명을 향상시키는 효과를 보인다[93].

PEDOT:PSS는 현재까지 개발된 전도성 고분자 중 가장 높은 전기 전도도를 나타내는 것으로 알려져 있으며, 수분산 형태로 제공되어 가공성이 우수하다는 장점이 있다[94]. PEDOT:PSS의 뛰어난 전기 전도도는 전극 내 전자 전달을 크게 향상시켜 고속 충방전 특성을 개선하는 데 효과적이다. 또한, PEDOT의 유연한 구조는 실리콘의 부피 변화를 완충하고 전극의 기계적 안정성을 향상시키는 데 기여한다[95].

이러한 실리콘-전도성 고분자 하이브리드 시스템은 일반적으로 향상된 사이클 수명과 속도 특성을 나타내며, 전도성 고분자의 유연성은 실리콘의 부피 팽창 문제를 완화하는 데 특히 중요한 역할을 한다. 최근에는 단순한 코팅 구조를 넘어 외부 자극(pH, 온도, 전압 등)에 반응하여 구조나 특성을 변경함으로써 부피 팽창을 능동적으로 제어하는 스마트 반응성 고분자 시스템 개발이나, 기계적 손상 스스로 복구하는 자가 치유 기능을 가진 고분자 복합체를 도입하여 전극 내구성을 극대화하려는 연구에 초점이 맞춰지고 있다[98].

Table 3. Electrochemical Performance of Silicon-2D Material Hybrid Systems

Si Anodes	Current Density (A/g)	Cycle Number	Remaining Capacity (mAh/g)	Source (1st Author, Year)
Si@ $Ti_3C_2$ Mxene	0.2	150	188	Kong, 2018
Si@ $Ti_3C_2$ Mxene	1.0	200	1342.8	Yang, 2020
nSi/MX-N	1.5	70	1106	Zhang, 2019
Si/Mxene	0.2	100	2118	Tian, 2019
$MoS_2$ @Si	0.1	300	1223	Marriam, 2023
Si/d- $Ti_3C_2$	0.5	200	1130	Zhu, 2019
nmSi-NH <sub>2</sub> /Mxene	1.0	100	929.5	Kong, 2024
Si/ $MoS_2$ -G	0.2	90	923	Kawade, 2019

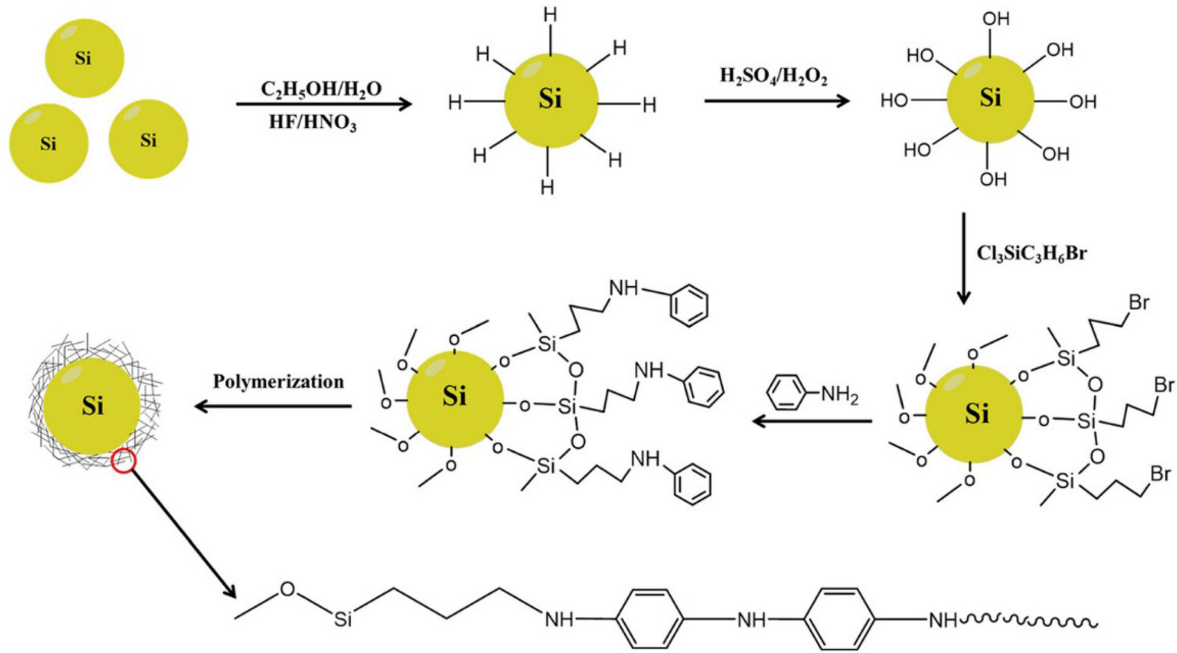


Fig. 7. Schematic illustration of the fabrication process of PANI-coated Si core-shell structures. Reproduced from ref. [97], licensed under CC BY 4.0 (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>); no changes made.

Table 4. Electrochemical Performance of Silicon-Conductive Polymer Hybrid Systems

Si Anodes	Current Density (A/g)	Cycle Number	Remaining Capacity (mAh/g)	Source (1st Author, Year)
SiNP/PANi	1.0	1000	1200	Wu, 2013
Si-oxalic acid-PANI	1.0	1000	610	Zhou, 2020
Si@Ppy	1.0	500	1047	Zhang, 2024
Si/PANI	1.0	100	545.3	Tu, 2013
Si/PANi/C	0.1	200	1470	Mu, 2019
Si/PANi	0.1	25	1840	Cai, 2010
Si@PEDOT	0.5	100	1439.8	Li, 2021
PEDOT:PSS/SiNP	1.0	100	1950	Higgins, 2016

Table 4는 실리콘-전도성 고분자 하이브리드 시스템의 전기화학적 성능을 요약한 것이다. 전도성 고분자는 유연성과 전도성을 동시에 제공하여 실리콘 음극의 성능을 향상시킨다. 특히 SiNP/PANi는 1.0 A/g의 전류 밀도에서 1000 사이클이라는 매우 긴 수명 동안 1200 mAh/g의 용량을 유지하여 PANI의 우수한 유연성과 장기 안정성을 입증하였다[99]. PEDOT:PSS/SiNP는 100 사이클 후 1950 mAh/g의 매우 높은 용량을 보여 PEDOT:PSS의 뛰어난 전기 전도도와 완충 효과를 확인할 수 있었다[84]. Si/PANi/C는 탄소와 PANI를 결합한 복합 구조로 200 사이클 후 1470 mAh/g의 안정적인 성능을 나타내어 다중 하이브리드 전략의 효과를 보여주었다[100]. 이러한 데이터는 전도성 고분자가 실리콘의 부피 변화를 효과적으로 수용하고 전극의 기계적 안정성을 유지하는 데 중요한 역할을 함을 입증한다.

2-5. 하이브리드 시스템의 성능 비교 및 상충 관계 분석

실리콘 음극의 성능을 극대화하기 위해 다양한 하이브리드 시스템이 제안되었지만, 각 접근법은 고유의 장점과 함께 상충 관계(trade-off)를 가진다. 앞서 제시한 Table 1~4의 정량적 데이터를 바탕으로 각 하이브리드 시스템의 특성을 비교 분석하면 다음과 같다.

탄소 기반 하이브리드 시스템(Table 1)은 우수한 전기 전도성과 기계적 안정성을 제공하며, Meso-Si/C와 같은 시스템은 1000 사이클의 장기 안정성을 보여주었다. 그러나 탄소 코팅 과정이 복잡하고 비용이 높을 수 있으며, 비활성 탄소의 양이 증가하면 전극의 전체 에너지 밀도가 감소할 수 있다는 한계가 있다. 금속 산화물 하이브리드(Table 2), 특히 SiO<sub>x</sub> 시스템은 내부에서 생성되는 Li<sub>2</sub>O 및 리튬 실리케이트 매트릭스를 통해 구조적 안정성을 확보하는 데 유리하지만, 초기 비가역 용량이 크다는 근본적인 문제를 안고 있다. Si@SnO<sub>2</sub>와 Si/Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>@rGO는 각각 1926 mAh/g과 1744.5 mAh/g의 높은 용량을 보였으나, 금속 산화물 자체의 낮은 전도도는 여전히 해결해야 할 과제이다.

2D 재료인 그래핀이나 MXene(Table 3)은 뛰어난 기계적 유연성과 전도성을 바탕으로 부피 팽창을 효과적으로 제어하며, Si/Mxene은 2118 mAh/g이라는 매우 높은 용량을 달성했다. 그러나 대량 생산 및 균일한 복합체 형성에 기술적인 어려움이 따르며, 일부 TMD는 낮은 전도도와 구조적 불안정성이라는 한계를 가진다. 전도성 고분자(Table 4)는 유연성이 뛰어나 부피 변화를 완충하는 데 효과적이며, SiNP/PANi는 1000 사이클 동안 1200 mAh/g의 안정적인 성능을

보였다. 그러나 일부 고분자는 전기 전도도가 상대적으로 낮거나 장기적인 화학적 안정성이 부족할 수 있다.

따라서, 특정 하이브리드 시스템의 선택은 초기 쿨롱 효율, 사이클 수명, 속도 특성, 에너지 밀도, 그리고 생산 비용과 같은 다양한 성능 지표 간의 균형을 신중하게 고려하여 결정되어야 한다. 미래 연구는 각 시스템의 장점을 결합한 다중 하이브리드 구조를 설계하거나, 특정 응용 분야의 요구사항에 맞춰 최적화된 맞춤형 하이브리드 시스템을 개발하는 방향으로 나아가야 할 것이다.

### 3. 결론 및 전망

실리콘 음극의 부피 팽창 문제를 해결하기 위해 다양한 하이브리드 시스템이 연구되었으며, 상당한 진전을 이루었다. 코어-셸, 샌드위치, 3차원 네트워크와 같은 구조적 설계와 탄소, 금속 산화물, 2D 재료, 전도성 고분자와 같은 다양한 재료와의 조합을 통해 실리콘 음극의 전기화학적 성능이 크게 향상되었다. 특히, 내부 빈 공간을 확보한 요크-셸(yolk-shell) 구조나 다중 셸 구조는 부피 팽창을 효과적으로 완충하여 사이클 안정성을 크게 개선하는 것으로 나타났다.

그러나 상용화를 위해서는 여전히 중요한 과제들이 남아있다. 높은 비표면적을 가진 나노구조 실리콘에서 SEI 층 형성으로 인해 발생하는 낮은 초기 쿨롱 효율(ICE)은 주요 장애물이다.  $\text{SiO}_x/\text{C}$  복합체의 사전 리튬화 같은 전략이 93.4%의 인상적인 ICE를 달성했지만, 이는 제조 공정의 복잡성과 비용을 증가시킨다. 또한, 수천 번의 사이클 동안, 특히 지속적인 부피 변화가 있는 환경에서 SEI의 장기적인 안정성을 보장하는 문제는 아직 완전히 해결되지 않았다. 마지막으로, 가장 유망한 합성 방법들의 확장성(scalability)이 주요 관심사로 남아있다. CVD나 ALD와 같은 복잡한 다단계 공정은 실험실 규모에서는 효과적이지만, 비용, 처리량, 산업적 실현 가능성 측면에서 상당한 장애물에 직면해 있다.

향후 연구는 개념 증명을 넘어 상용화의 실질적인 장벽을 해결하는 데 초점을 맞춰야 한다. 재료 설계, 공정 공학, 그리고 근본적인 이해에 초점을 맞춘 다각적인 접근이 필요하다. 비활성 물질의 함량을 최소화하면서 구조적 무결성을 유지하는 하이브리드 구조 최적화, 기존 배터리 생산 라인과 호환되는 확장 가능하고 비용 효율적인 제조 공정 개발, 그리고 낮은 ICE 및 SEI 불안정성과 같은 계면 문제를 해결하는 것이 필수적이다. 특히, 얇고 유연하며  $\text{LiF}$ 가 풍부한 SEI 형성을 촉진하는 첨가제를 포함한 고급 전해질 개발과  $\text{Al}_2\text{O}_3$  또는  $\text{TiO}_2$ 의 초박막 ALD 코팅과 같은 표면 공학 기술의 결합은 시너지 효과를 통해 사이클 수명과 효율을 극적으로 향상시킬 수 있다. 마지막으로, 개발된 소재들을 실제 상용 환경과 유사한 조건(높은 질량 로딩, 적은 전해액 양 등)의 완전셀(full-cell)에서 평가하여 진정한 잠재력을 검증해야 차세대 고에너지 밀도 배터리로의 통합이 가능해질 것이다.

실리콘 음극의 상용화를 가속화하기 위해서는 실험실 수준의 반쪽 전지(half-cell) 평가를 넘어 산업적 적용 가능성을 타진하는 연구가 필수적이다. 이를 위해서는 높은 면적당 활물질 로딩(high areal loading,  $>3 \text{ mAh/cm}^2$ )과 상용 수준의 낮은 전해액/용량 비율(E/C ratio) 조건에서 전극의 성능을 평가해야 한다. 또한, 흑연-실리콘 복합 음극을 리튬코발트산화물(LCO)이나 니켈-코발트-망간(NCM)과 같은 상용 양극과 결합한 완전셀(full-cell)에서의 장기적인 안정성 검증이 반드시 필요하다. 이 과정에서 전극의 팽창이 분리막의 기공

구조나 이온 전도도에 미치는 영향, 그리고 바인더의 종류와 함량이 전극의 기계적 내구성과 전기화학적 성능에 미치는 복합적인 효과에 대한 심도 있는 분석이 요구된다. 이러한 산업적 관점의 연구는 실험실에서 개발된 고성능 하이브리드 재료가 실제 배터리 시스템에서 마주할 수 있는 다양한 문제들을 미리 파악하고 해결 방안을 모색함으로써, 실리콘 음극의 실용화 가능성을 한 단계 높이는 데 결정적인 기여를 할 것이다.

## 감 사

이 논문은 (2024.03.01.~2026.02.28.)학년도에 청주대학교 산업과학연구소가 지원한 학술연구 조성비(특별연구과제)에 의해 연구되었음.

## References

1. Yi, X., Qi, G., Liu, X., Depcik, C. and Liu, L., "Challenges and Strategies toward Anode Materials with Different Lithium Storage Mechanisms for Rechargeable Lithium Batteries," *J. Energy Storage*, **95**, 112480(2024).
2. Wang, K., Hua, W., Huang, X., Stenzel, D., Wang, J., Ding, Z., Cui, Y., Wang, Q., Ehrenberg, H., Breitung, B., Kübel, C. and Mu, X., "Synergy of Cations in High Entropy Oxide Lithium Ion Battery Anode," *Nat. Commun.*, **14**, 1487(2023).
3. Shao, G., Hanaor, D. A. H., Wang, J., Kober, D., Li, S., Wang, X., Shen, X., Bekheet, M. F. and Gurlo, A., "Polymer-Derived SiOC Integrated with a Graphene Aerogel as a Highly Stable Li-Ion Battery Anode," *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **12**, 46045-46056(2020).
4. Cui, Q., Zhong, Y., Pan, L., Zhang, H., Yang, Y., Liu, D., Teng, F., Bando, Y., Yao, J. and Wang, X., "Recent Advances in Designing High-Capacity Anode Nanomaterials for Li-Ion Batteries and Their Atomic-Scale Storage Mechanism Studies," *Adv. Sci.*, **5**, 1700902(2018).
5. Je, M., Han, D.-Y., Ryu, J. and Park, S., "Constructing Pure Si Anodes for Advanced Lithium Batteries," *Acc. Chem. Res.*, **56**, 2213-2224(2023).
6. Ma, Y., Guo, P., Liu, M., Cheng, P., Zhang, T., Liu, J., Liu, D. and He, D., "To Achieve Controlled Specific Capacities of Silicon-Based Anodes for High-Performance Lithium-Ion Batteries," *J. Alloys Compd.*, **905**, 164189(2022).
7. Li, H., Yamaguchi, T., Matsumoto, S., Hoshikawa, H., Kumagai, T., Okamoto, N. L. and Ichitsubo, T., "Circumventing Huge Volume Strain in Alloy Anodes of Lithium Batteries," *Nat. Commun.*, **11**, 1584(2020).
8. Shen, H., Wang, Q., Chen, Z., Rong, C. and Chao, D., "Application and Development of Silicon Anode Binders for Lithium-Ion Batteries," *Materials*, **16**, 4266(2023).
9. Chen, C.-Y., Sano, T., Tsuda, T., Ui, K., Oshima, Y., Yamagata, M., Ishikawa, M., Haruta, M., Doi, T., Inaba, M. and Kuwabata, S., "In Situ Scanning Electron Microscopy of Silicon Anode Reactions in Lithium-Ion Batteries during Charge/Discharge Processes," *Sci. Rep.*, **6**, 36153(2016).
10. Gross, S. J., Hsieh, M.-T., Mumm, D. R., Valdevit, L. and Mohraz, A., "Alleviating Expansion-Induced Mechanical Degradation in Lithium-Ion Battery Silicon Anodes via Morphological Design,"

- Extreme Mech. Lett.*, **54**, 101746(2022).
11. Müller, S., Pietsch, P., Brandt, B.-E., Baade, P., De Andrade, V., De Carlo, F. and Wood, V., "Quantification and Modeling of Mechanical Degradation in Lithium-Ion Batteries Based on Nanoscale Imaging," *Nat. Commun.*, **9**, 2340(2018).
  12. Wang, A., Kadam, S., Li, H., Shi, S. and Qi, Y., "Review on Modeling of the Anode Solid Electrolyte Interphase (SEI) for Lithium-Ion Batteries," *Npj Comput. Mater.*, **4**, 15(2018).
  13. Ezzedine, M., Jardali, F., Florea, I., Zamfir, M.-R. and Cojocaru, C.-S., "Nanostructuring Strategies for Silicon-Based Anodes in Lithium-Ion Batteries: Tuning Areal Silicon Loading, SEI Formation/Irreversible Capacity Loss, Rate Capability Retention and Electrode Durability," *Batteries Supercaps*, **6**, e202200451(2023).
  14. Haro, M., Kumar, P., Zhao, J., Koutsogiannis, P., Porkovich, A. J., Ziadi, Z., Bouloumis, T., Singh, V., Juarez-Perez, E. J., Toulkeridou, E., Nordlund, K., Djurabekova, F., Sowwan, M. and Grammatikopoulos, P., "Nano-Vault Architecture Mitigates Stress in Silicon-Based Anodes for Lithium-Ion Batteries," *Commun. Mater.*, **2**, 16(2021).
  15. Riedel, O., Düttmann, A., Dühnen, S., Kolny-Olesiak, J., Gutsche, C., Parisi, J., Winter, M., Knipper, M. and Placke, T., "Surface-Modified Tin Nanoparticles and Their Electrochemical Performance in Lithium Ion Battery Cells," *ACS Appl. Nano Mater.*, **2**, 3577-3589(2019).
  16. Sun, L., Jiang, X. and Jin, Z., "Interfacial Engineering of Porous SiO<sub>x</sub>@C Composite Anodes toward High-performance Lithium-ion Batteries," *Chem. Eng. J.*, **474**, 145960(2023).
  17. Seydibeyoğlu, M. Ö., Dogru, A., Wang, J., Rencheck, M., Han, Y., Wang, L., Seydibeyoğlu, E. A., Zhao, X., Ong, K., Shatkin, J. A., Eshaghi, S. S., Bhandari, S., Ozcan, S. and Gardner, D. J., "Review on Hybrid Reinforced Polymer Matrix Composites with Nanocellulose, Nanomaterials, and Other Fibers," *Polymers*, **15**, 984(2023).
  18. Roviello, G., Occhicone, A., De Gregorio, E., Ricciotti, L., Cioffi, R., Ferone, C. and Tarallo, O., "Geopolymer-Based Composite and Hybrid Materials: The Synergistic Interaction between Components," *Sustainable Mater. Technol.*, **44**, e01404(2025).
  19. Liang, Y., Li, Y., Wang, H. and Dai, H., "Strongly Coupled Inorganic/Nanocarbon Hybrid Materials for Advanced Electrocatalysis," *J. Am. Chem. Soc.*, **135**, 2013-2036(2013).
  20. Hou, S.-C., Chen, T.-Y., Wu, Y.-H., Chen, H.-Y., Lin, X.-D., Chen, Y.-Q., Huang, J.-L. and Chang, C.-C., "Mechanochemical Synthesis of Si/Cu<sub>3</sub>Si-Based Composite as Negative Electrode Materials for Lithium Ion Battery," *Sci. Rep.*, **8**, 12695(2018).
  21. Cheng, Y., Guo, Z., Zheng, C., Zhang, L., Wang, S. and Du, H., "Revisiting the Core Problem Impeding the Commercialization of Silicon-Based Lithium-Ion Batteries," *Energy Mater. Devices*, **3**, 9370055(2025).
  22. Zhang, Z., Ma, R., Yang, J. G., Wang, J. and Peng, Y., "A Review on Mechanical, Electrical, Chemical, and Electrochemical Properties of Coating Materials for Silicon Anodes in Lithium-Ion Batteries," *Small*, **21**, e06400(2025).
  23. Kong, X., Xi, Z., Wang, L., Zhou, Y., Liu, Y., Wang, L., Li, S., Chen, X. and Wan, Z., "Recent Progress in Silicon-Based Materials for Performance-Enhanced Lithium-Ion Batteries," *Molecules*, **28**, 2079(2023).
  24. Kang, W., Zhang, Q., Jia, Y., Liu, X., Jiang, N., Zhao, Y., Wu, C. and Guan, L., "Enhancing the Cycling Stability of Commercial Silicon Nanoparticles by Carbon Coating and Thin Layered Single-Walled Carbon Nanotube Webbing," *J. Power Sources*, **602**, 234338(2024).
  25. Yang, L. Y., Li, H. Z., Liu, J., Sun, Z. Q., Tang, S. S. and Lei, M., "Dual Yolk-shell Structure of Carbon and Silica-coated Silicon for High-performance Lithium-ion Batteries," *Sci. Rep.*, **5**, 10908(2015).
  26. Jin, B., Liao, L., Shen, X., Mei, Z., Du, Q., Liang, L., Lei, B. and Du, J., "Advancement in Research on Silicon/Carbon Composite Anode Materials for Lithium-Ion Batteries," *Metals*, **15**, 386(2025).
  27. Xu, J., Yin, Q., Li, X., Tan, X., Liu, Q., Lu, X., Cao, B., Yuan, X., Li, Y., Shen, L. and Lu, Y., "Spheres of Graphene and Carbon Nanotubes Embedding Silicon as Mechanically Resilient Anodes for Lithium-Ion Batteries," *Nano Lett.*, **22**, 3054-3061(2022).
  28. Zhang, Z., Wu, Y., Mo, Z., Lei, X., Xie, X., Xue, X., Qin, H. and Jiang, H., "Research Progress of Silicon-Based Anode Materials for Lithium-Ion Batteries," *RSC Adv.*, **15**, 10731-10753(2025).
  29. Vorauer, T., Schöggel, J., Sanadhya, S. G., Poluektov, M., Widanage, W. D., Figiel, L., Schädler, S., Tordoff, B., Fuchsichler, B., Koller, S. and Brunner, R., "Impact of Solid-Electrolyte Interphase Reformation on Capacity Loss in Silicon-Based Lithium-Ion Batteries," *Commun. Mater.*, **4**, 44(2023).
  30. Li, J., Fan, S., Xiu, H., Wu, H., Huang, S., Wang, S., Yin, D., Deng, Z. and Xiong, C., "TiO<sub>2</sub>-Coated Silicon Nanoparticle Core-Shell Structure for High-Capacity Lithium-Ion Battery Anode Materials," *Nanomaterials*, **13**, 1144(2023).
  31. Adenusi, H., Chass, G. A., Passerini, S., Tian, K. V. and Chen, G., "Lithium Batteries and the Solid Electrolyte Interphase (SEI)-Progress and Outlook," *Adv. Energy Mater.*, **13**, 2203307(2023).
  32. Lin, Y.-X., Liu, Z., Leung, K., Chen, L.-Q., Lu, P. and Qi, Y., "Connecting the Irreversible Capacity Loss in Li-Ion Batteries with the Electronic Insulating Properties of Solid Electrolyte Interphase (SEI) Components," *J. Power Sources*, **309**, 221-230(2016).
  33. Sun, L., Wang, L., Wang, T., Liu, Y., Qiao, Y., Lu, X., Qi, M. and Jin, Z., "Fluorinated MXene-engineered LiF-rich Solid Electrolyte Interphase and Hierarchical Confinement Strategy Enabling High Performance Micro-sized Silicon Anodes," *Nano Res.*, in press(2025).
  34. Lee, K., Yoon, S., Hong, S., Kim, H., Oh, K., Moon, J., "Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Coated Si-Alloy Prepared by Atomic Layer Deposition as Anodes for Lithium-Ion Batteries," *Materials*, **15**, 4189(2022).
  35. Das, S., Brennhagen, A., Cavallo, C., Killi, V. A.-L. K., Jensen, I. J. T., Thøgersen, A., Mæhlen, J. P., Lai, S. Y., Nilsen, O. and Kuposov, A. Y., "Directing SEI Formation on Si-Based Electrodes Using Atomic Layer Deposition," *Chem. Commun.*, **60**, 15011-15014(2024).
  36. Huertas, Z. C., Settiani, D., Flox, C., Morante, J. R., Kallio, T. and Biendicho, J. J., "High Performance Silicon Electrode Enabled by Titanicone Coating," *Sci. Rep.*, **12**, 137(2022).
  37. Veith, G. M., Doucet, M., Sacci, R. L., Browning, J. F., An, S. J., Daniel, C. and Wood, D. L., "Determination of the Solid Electrolyte Interphase Structure Built on a Silicon Electrode Using Fluoroethylene Carbonate," *Sci. Rep.*, **7**, 6326(2017).
  38. Zhang, H., Wang, L., Chen, X., Li, J., Li, X., Xie, X. and Mai, L., "MXene Frameworks Promote the Growth and Stability of LiF-Rich Solid-Electrolyte Interphase on Silicon Anodes," *ACS Appl.*

- Mater. Interfaces*, **12**, 15110-15120(2020).
39. Gong, L., Hu, B., Wang, J., Xu, H., Liu, J., Yang, Y., Lin, B., Li, M. and Chen, Q., "Cross-Linked  $\beta$ -CD-CMC as an Effective Aqueous Binder for Silicon Anodes in Lithium-Ion Batteries," *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **14**, 10557-10569(2022).
  40. Toki, G. F. I., Hossain, M. K., Rehman, W. U., Manj, R. Z. A., Wang, L. and Yang, J., "Recent Progress and Challenges in Silicon-Based Anode Materials for Lithium-Ion Batteries," *Ind. Chem. Mater.*, **2**, 226-269(2024).
  41. Zhou, X., Wan, L.-J. and Guo, Y.-G., "Electrospun Silicon Nanoparticle/Porous Carbon Hybrid Nanofibers for Lithium-Ion Batteries," *Small*, **9**, 2684-2688(2013).
  42. Zhang, M., Bai, N., Lin, W., Wang, H., Li, J., Ma, L., Wang, X., Zhang, D. and Cao, Z., "Carbon-Encapsulated Silicon Ordered Nanofiber Membranes as High-Performance Anode Material for Lithium-Ion Batteries," *J. Alloys Compd.*, **1010**, 177012(2025).
  43. Zhang, D., Wang, Y., Zhao, H., Cai, C., Zhang, Z., Hu, W., Dong, H. and Ding, S., "Embedding Silicon Nanoparticle in Porous Carbon Fiber for Highly Stable Lithium-Ion Battery Anode," *Mater. Lett.*, **361**, 136015(2024).
  44. Mei, Y., He, Y., Zhu, H., Ma, Z., Pu, Y., Chen, Z., Li, P., He, L., Wang, W. and Tang, H., "Recent Advances in the Structural Design of Silicon/Carbon Anodes for Lithium Ion Batteries: A Review," *Coatings*, **13**, 436(2023).
  45. She, Z., Gad, M., Ma, Z., Li, Y. and Pope, M. A., "Enhanced Cycle Stability of Crumpled Graphene-Encapsulated Silicon Anodes via Polydopamine Sealing," *ACS Omega*, **6**, 12293-12305(2021).
  46. Cao, Y., Su, M., Zhang, X., Lin, Q. and Bi, T., "A 3D Network-Based Hierarchical Porous Carbon/Si@C Composite as Anode Material for Lithium-Ion Battery with Desirable Performance," *J. Energy Storage*, **98**, 112988(2024).
  47. Kim, S. K., Chang, H. K., Kim, C. M., Yoo, H. D., Kim, H. S. and Jang, H. D., "Fabrication of Ternary Silicon-Carbon Nanotubes-Graphene Composites by Co-Assembly in Evaporating Droplets for Enhanced Electrochemical Energy Storage," *J. Alloys Compd.*, **751**, 43-48(2018).
  48. Min, K. S., Kim, K. T., An, H. L., Go, Y. H., Lee, Y. E., Lim, D. W. and Baeck, S. H., "Yolk-Shell-Structured SiO<sub>2</sub>@N,P Co-Doped Carbon Spheres as Highly Stable Anode Materials for Lithium Ion Batteries," *J. Power Sources*, **543**, 231849(2022).
  49. Ryu, J., Chen, T., Bok, T., Song, G., Ma, J., Hwang, C., Luo, L., Song, H.-K., Cho, J., Wang, C., Zhang, S. and Park, S., "Mechanical Mismatch-driven Rippling in Carbon-coated Silicon Sheets for Stress-resilient Battery Anodes," *Nat. Commun.*, **9**, 2924(2018).
  50. Pappas, G. S., Ferrari, S., Huang, X., Bhagat, R., Haddleton, D. M. and Wan, C., "Heteroatom Doped-Carbon Nanospheres as Anodes in Lithium Ion Batteries," *Materials*, **9**, 35(2016).
  51. Schwan, J., Nava, G. and Mangolini, L., "Critical Barriers to the Large Scale Commercialization of Silicon-containing Batteries," *Nanoscale Adv.*, **2**, 4368-4389(2020).
  52. Xu, Z. L., Kim, J. K., Jin, B. S., Liu, H., Kim, S., Park, C. and Cho, J., "Carbon-Coated Mesoporous Silicon Microsphere Anodes with Greatly Reduced Volume Expansion for Lithium-Ion Batteries," *J. Mater. Chem. A*, **4**, 10910-10918(2016).
  53. Su, Y., Zhang, X., Li, J., Wang, Y., Chen, L., Liu, Q. and Zhou, D., "Scalable Synthesis of Micrometer-Sized Porous Silicon/Carbon Composites (M-pSi@C) for High-Performance Lithium-Ion Battery Anodes," *Chem. Eng. J.*, **451**, 138394(2023).
  54. Wang, C., Sireesha, P., Shang, J., McCloy, J. S., Liu, J. and Zhong, W.-H., "Converting Commercial Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> to Effective Anode Material Using Glucose as 'Etching' Agent," *Ceram. Int.*, **49**, 32652-32662(2023).
  55. Zhou, M., Gordin, M. L., Chen, S., Xu, T., Song, J., Lv, D. and Wang, D., "Enhanced Performance of SiO/Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Composite as an Anode for Rechargeable Li-Ion Batteries," *Electrochem. Commun.*, **28**, 79-82(2013).
  56. Yan, Y., Chen, Y., Li, Y., Wu, X., Jin, C. and Wang, Z., "Synthesis of Si/Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Anchored rGO Frameworks as High-Performance Anodes for Li-Ion Batteries," *Int. J. Mol. Sci.*, **22**, 11041(2021).
  57. Wang, Q., Guo, C., He, J., Yang, S., Liu, Z. and Wang, Q., "Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/C-Modified Si Nanoparticles as Anode Material for High-Performance Lithium-Ion Batteries," *J. Alloys Compd.*, **795**, 284-290(2019).
  58. Wang, B., Su, D., Park, J., Ahn, H. and Wang, G., "Graphene-Supported SnO<sub>2</sub> Nanoparticles Prepared by a Solvothermal Approach for an Enhanced Electrochemical Performance in Lithium-Ion Batteries," *Nanoscale Res. Lett.*, **7**, 215(2012).
  59. Lei, Y., Li, S., Du, M., Mi, J., Gao, D.-C., Hao, L., Jiang, L.-J., Luo, M., Jiang, W.-Q., Li, F. and Wang, S.-H., "Preparation of Double-Shell Si@SnO<sub>2</sub>@C Nanocomposite as Anode for Lithium-Ion Batteries by Hydrothermal Method," *Rare Met.*, **42**, 2972-2981(2023).
  60. Ma, T., Yu, X., Li, H., Zhang, W., Cheng, X., Zhu, W. and Qiu, X., "High Volumetric Capacity of Hollow Structured SnO<sub>2</sub>@Si Nanospheres for Lithium-Ion Batteries," *Nano Lett.*, **17**, 3959-3964(2017).
  61. Li, J., Fan, S., Xiu, H., Wu, H., Huang, S., Wang, S., Yin, D., Deng, Z. and Xiong, C., "TiO<sub>2</sub>-Coated Silicon Nanoparticle Core-Shell Structure for High-Capacity Lithium-Ion Battery Anode Materials," *Nanomaterials*, **13**, 1144(2023).
  62. Han, J., Kong, D., Lv, W., Tang, D.-M., Han, D., Zhang, C., Liu, D., Xiao, Z., Zhang, X., Xiao, J., He, X., Hsia, F.-C., Zhang, C., Tao, Y., Golberg, D., Kang, F., Zhi, L. and Yang, Q.-H., "Caging Tin Oxide in Three-dimensional Graphene Networks for Superior Volumetric Lithium Storage," *Nat. Commun.*, **9**, 402(2018).
  63. Zhu, J., Wang, Y., Li, H., Zhang, Q., Liu, X., Zhao, J. and Chen, Y., "Improving the Electrochemical Performance of Silicon Anodes by Constructing Core-Shell Si@SnO<sub>2</sub> Structures," *Appl. Surf. Sci.*, **573**, 151607(2022).
  64. Yang, J., Wang, Y., Li, W., Wang, L., Fan, Y., Jiang, W., Luo, W., Wang, Y., Kong, B., Selomulya, C., Liu, H. K., Dou, S. X., Zhao, D., "Amorphous TiO<sub>2</sub> Shells: A Vital Elastic Buffering Layer on Silicon Nanoparticles for High-Performance and Safe Lithium Storage," *Adv. Mater.*, **29**, 1700523(2017).
  65. Lotfabad, E. M., Kalisvaart, W. P., Cui, X., Kohandehghan, A., Li, Z. and Mitlin, D., "ALD TiO<sub>2</sub> Coated Silicon Nanowires for Lithium-Ion Battery Anodes with Enhanced Cycling Stability and Coulombic Efficiency," *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **15**, 13646-13657(2013).
  66. Deng, W., Zhang, Y., Liu, J., Li, X. and Zhou, X., "Recent Advances of High-Performance SiO<sub>x</sub> (0<x<2) Anodes for Lithium-Ion Batteries," *Energy Storage Mater.*, **66**, 92-117(2024).
  67. Zhou, X., Yin, Y., Cao, A. and Wan, L., "Research Progress of Silicon Suboxide-Based Anodes for Lithium-Ion Batteries," *Front. Mater.*, **8**, 628233(2021).

68. Xu, M., Liu, Y., Zhang, H., Li, J., Wang, C. and Guo, Z., "A Low-Cost and High-Capacity SiO<sub>x</sub>/C@Graphite Hybrid as an Advanced Anode for Lithium-Ion Batteries," *ACS Omega*, **5**, 17922-17930 (2020).
69. Chen, T., Wu, Z., Zhang, Q., Su, X. and Shen, X., "Recent Advancement of SiO<sub>x</sub>-Based Anodes for Lithium-Ion Batteries," *J. Power Sources*, **363**, 126-144(2017).
70. Zhang, J., Zuo, X., Li, Y., Yang, J., Liu, X., Guo, Y., Cui, Y. and Zhou, X., "Metallurgically Lithiated SiO<sub>x</sub> Anode with High Capacity and Ambient Stability for Lithium-Ion Batteries," *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **113**, 11636-11641(2016).
71. Yan, M. Y., Zhang, Y., Wang, Z., Li, X., Huang, Z., Wang, J. and Zhang, Q., "Enabling SiO<sub>x</sub>/C Anode with High Initial Coulombic Efficiency through a Chemical Pre-Lithiation Strategy for High-Energy-Density Lithium-Ion Batteries," *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **12**, 15337-15345(2020).
72. Zhang, X., Xiao, H., Chen, Y., Wang, L., Yang, J., Xu, H. and Lu, Y., "High-Performance Lithiated SiO<sub>x</sub> Anode Obtained by a Simple Pre-Lithiation Method for Lithium-Ion Batteries," *ACS Appl. Energy Mater.*, **2**, 6083-6091(2019).
73. Huang, B., Huang, T., Wan, L. and Yu, A., "Pre-Lithiating SiO Anodes for Lithium-Ion Batteries by a Simple, Effective, and Controllable Strategy Using Stabilized Lithium Metal Powder," *ACS Sustain. Chem. Eng.*, **7**, 8829-8835(2019).
74. Wang, G., Gao, Q., Wu, H., Jin, Y., Zhang, H. and Wang, H., "High Performance Amorphous-Si@SiO<sub>x</sub>/C Composite Anode Materials for Li-Ion Batteries Derived from Ball-Milling and in Situ Carbonization," *J. Power Sources*, **256**, 190-199(2014).
75. Kong, S., Liu, C., Ren, J., Wang, T., Geng, X., Yuan, Y., Zhao, C., Zhao, C. and Yang, L., "The Synergistic Effect of Cross-Linked and Electrostatic Self-Assembly Si/MXene Composites Anode for Highly Efficient Lithium-Ion Battery," *Coatings*, **14**, 1210(2024).
76. Tian, H., Li, X., Yang, W., Ying, H., Wang, G. and Han, W.-Q., "Flexible and Freestanding Silicon/MXene Composite Papers for High-Performance Lithium-Ion Batteries," *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **11**, 13665-13673(2019).
77. Yang, H., Liu, Y., Li, Q., Lu, C., Li, Z., Jiao, Q. and Feng, C., "Facile Electrostatic Assembly of Si@MXene Superstructures for High-Performance Lithium-Ion Batteries," *J. Colloid Interface Sci.*, **586**, 12-22(2020).
78. Zhou, Y., Kucheyev, S. O. and Wan, L. F., "First-Principles Elucidation of Defect-Mediated Li Transport in Hexagonal Boron Nitride," *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **27**, 3997-4003(2025).
79. Yadav, D., Jung, J.-H., Lee, Y., Kim, T. Y.-S., Park, E., Choi, K.-I., Cha, J., Song, W.-J., Choi, J.-H., Doo, S. and Kim, J., "Enhancement of Coulombic Efficiency and Capacity of Li-Ion Batteries Using a Boron Nitride Nanotubes-Dispersed Electrolyte with High Ionic Conductivity," *ACS Mater. Lett.*, **5**, 2648-2655(2023).
80. Marriam, I., Saini, M., Dhiman, P., Gahlaut, R. and Singh, D., "Few-Layer MoS<sub>2</sub> Nanosheets with and without Silicon Nanoparticles as Anodes for Lithium-Ion Batteries," *J. Mater. Chem. A*, **11**, 5420-5433(2023).
81. Mayorga-Martinez, C. C., Ambrosi, A., Eng, A. Y. S., Sofer, Z. and Pumera, M., "Transition Metal Dichalcogenides (MoS<sub>2</sub>, MoSe<sub>2</sub>, WS<sub>2</sub> and WSe<sub>2</sub>) Exfoliation Technique Has Strong Influence upon Their Capacitance," *Electrochem. Commun.*, **56**, 24-28(2015).
82. Balqis, F., Eldona, C., Laksono, B. T., Aini, Q., Hamid, F. H., Wasisto, H. S. and Sumboja, A., "Conductive Polymer Frameworks in Silicon Anodes for Advanced Lithium-Ion Batteries," *ACS Appl. Polym. Mater.*, **5**, 4933-4952(2023).
83. Wu, H., Yu, G., Pan, L., Liu, N., McDowell, M. T., Bao, Z. and Cui, Y., "Stable Li-Ion Battery Anodes by In-Situ Polymerization of Conducting Hydrogel to Conformally Coat Silicon Nanoparticles," *Nat. Commun.*, **4**, 1943(2013).
84. Higgins, T. M., Park, S.-H., King, P. J., Zhang, C., McEvoy, N., Berner, N. C., Daly, D., Shmeliov, A., Khan, U., Duesberg, G., Nicolosi, V. and Coleman, J. N., "A Commercial Conducting Polymer as Both Binder and Conductive Additive for Silicon Nanoparticle-Based Lithium-Ion Battery Negative Electrodes," *ACS Nano*, **10**, 3702-3713(2016).
85. Dhason, M. V. A., Bhattacharya, I., Mansour, M., Lazer, S. J., Banik, T. and Soyoye, B., "Conductive Polymers in Si Anodes for Lithium-Ion Batteries: Advancements, Challenges and Future Aspects," *Mater. Today Energy*, **51**, 101897(2025).
86. Ka, N. and Rout, C. S., "Conducting Polymers: A Comprehensive Review on Recent Advances in Synthesis, Properties and Applications," *RSC Adv.*, **11**, 5659-5697(2021).
87. Bednarczyk, K., Matysiak, W., Tański, T., Janeczek, H., Schab-Balcerzak, E. and Libera, M., "Effect of Polyaniline Content and Protonating Dopants on Electroconductive Composites," *Sci. Rep.*, **11**, 7487(2021).
88. Tu, J., Hu, L., Wang, W., Hou, J., Zhu, H. and Jiao, S., "In-Situ Synthesis of Silicon/Polyaniline Core/Shell and Its Electrochemical Performance for Lithium-Ion Batteries," *J. Electrochem. Soc.*, **160**, A1916-A1921(2013).
89. Mu, G., Ding, Z., Mu, D., Wu, B., Bi, J., Zhang, L., Yang, H., Wu, H. and Wu, F., "Hierarchical Void Structured Si/PANI/C Hybrid Anode Material for High-Performance Lithium-Ion Batteries," *Electrochim. Acta*, **300**, 341-348(2019).
90. Eldona, C., Hawari, N. H., Hamid, F. H., Dempwolf, W., Iskandar, F., Peiner, E., Wasisto, H. S. and Sumboja, A., "A Free-Standing Polyaniline/Silicon Nanowire Forest as the Anode for Lithium-Ion Batteries," *Chem. Asian J.*, **17**, e202200946(2022).
91. Zhou, J., Zhou, L., Yang, L., Chen, T., Li, J., Pan, H., Yang, Y. and Wang, Z., "Carbon Free Silicon/Polyaniline Hybrid Anodes with 3D Conductive Structures for Superior Lithium-Ion Batteries," *Chem. Commun.*, **56**, 2328-2331(2020).
92. Guo, Z. P., Wang, J. Z., Liu, H. K. and Dou, S. X., "Study of Silicon/Polypyrrole Composite as Anode Materials for Li-Ion Batteries," *J. Power Sources*, **146**, 448-451(2005).
93. Zhang, S., Chen, S., Wang, Y., Zhang, T., Yue, H., Li, T., Li, W., Li, H., Hao, Y. and Gao, Y., "Fabrication of Polypyrrole-Coated Silicon Nanoparticle Composite Electrode for Lithium-Ion Battery," *Ionics*, **30**, 7869-7879(2024).
94. Kim, Y., Yoo, S. and Kim, J.-H., "Water-Based Highly Stretchable PEDOT:PSS/Nonionic WPU Transparent Electrode," *Polymers*, **14**, 949(2022).
95. Yue, L., Wang, S., Zhao, X. and Zhang, L., "Nano-Silicon Composites Using Poly(3,4-Ethylenedioxythiophene):Poly(styrenesulfonate) as Elastic Polymer Matrix and Carbon Source for Lithium-Ion Battery Anode," *J. Mater. Chem.*, **22**, 1094-1099(2012).
96. Li, S., Huang, J., Wang, J. and Han, K., "Micro-Sized Porous Silicon@PEDOT with High Rate Capacity and Stability for Li-Ion Battery Anode," *Mater. Lett.*, **293**, 129712(2021).

97. Wen, W., Liu, Y. and Tamirat, A. G., "Self-Assembled-Monolayer-Induced Polyaniline-Grafted Silicon Nanoparticles for Highly Stable Lithium-Ion Battery Anodes," *ACS Omega*, **10**, 21030-21039(2025).
98. Maji, R., Salvador, M. A., Ruini, A., Magri, R. and Degoli, E., "A First-Principles Study of Self-Healing Binders for Next-Generation Si-Based Lithium-Ion Batteries," *Mater. Today Chem.*, **29**, 101474(2023).
99. Wu, H., Zheng, G., Liu, N., Carney, T. J., Yang, Y., Cui, Y. and Zhao, J., "Stable Li-Ion Battery Anodes by In-Situ Polymerization of Conducting Hydrogel to Conformally Coat Silicon Nanoparticles," *Nat. Commun.*, **4**, 1943(2013).
100. Mu, G., Liu, W., Zhang, Q., Zhang, R., Liu, J., Zhang, X. and Wang, J., "Hierarchical Void Structured Si/PANi/C Hybrid Anode Material for High-Performance Lithium-Ion Batteries," *Electrochim. Acta*, **300**, 341-349(2019).

#### Authors

**Taegyun Kwon:** Assistant Professor, Department of Energy Convergence Engineering, Cheongju University, 111 Taejeong-ro, Maengdong-myeon, Eumseong-gun, Chungcheongbuk-do, 27739, Korea; tgkwon@cju.ac.kr