



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2015-0046776

(43) 공개일자 2015년04월30일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01M 4/88 (2006.01) H01M 4/02 (2006.01)

(52) CPC특허분류
H01M 4/8878 (2013.01)
H01M 8/1086 (2013.01)

(21) 출원번호 10-2015-0045223(분할)

(22) 출원일자 2015년03월31일

심사청구일자 2015년03월31일

(62) 원출원 특허 10-2013-0125880

원출원일자 2013년10월22일

심사청구일자 2013년10월22일

(71) 출원인

연세대학교 산학협력단

서울특별시 서대문구 연세로 50 (신촌동, 연세대학교)

(72) 발명자

설용건

서울특별시 서대문구 응암로 28, 5동 904호 (북가좌동, 한양아파트)

조용일

경기도 성남시 분당구 양현로 220, 1108동 304호 (이매동, 이매촌삼환아파트)

(뒷면에 계속)

(74) 대리인

특허법인다나

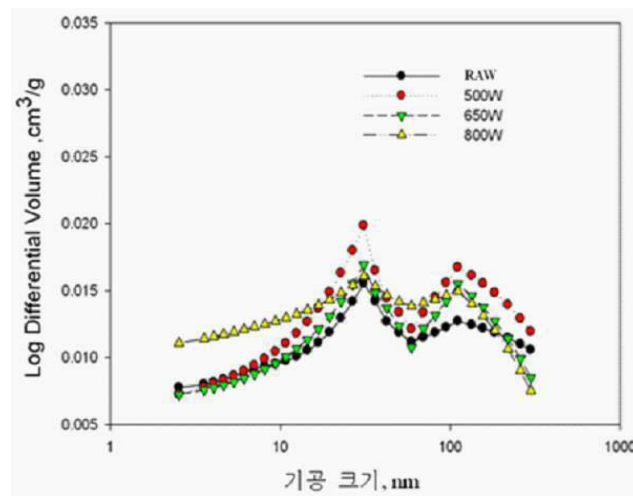
전체 청구항 수 : 총 7 항

(54) 발명의 명칭 전지 및 마이크로웨이브 방사 처리를 통한 전지의 표면처리 방법

(57) 요약

본 발명은 전지 및 마이크로웨이브 방사 처리를 통한 전지의 표면처리 방법에 관한 것으로, 본 발명에 따른 전지는 짧은 시간 내의 마이크로웨이브 방사 처리를 통해, 이온의 전달 속도, 충·방전 속도 및 촉매 활성도를 증가시켜, 전지의 전기 전도도 및 효율을 높일 수 있다.

대표도 - 도2



(52) CPC특허분류

H01M 2004/021 (2013.01)

(72) 발명자

전유권

경기도 평택시 세교2로 45, 103동 904호 (세교동,
보성청실아파트)

박세준

경기도 용인시 수지구 상현로 58, 254동 901호 (상
현동, 금호베스트빌2단지아파트)

박정호

대전광역시 중구 보문산로 147-11, 402호 (산성동,
부성빌)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 2012M1A2A2671711

부처명 미래창조과학부

연구관리전문기관 한국연구재단

연구사업명 기후변화대응기술개발사업

연구과제명 고성능 및 내구성을 지닌 고온형 연료전지용 촉매극 개발

기 여 율 1/1

주관기관 연세대학교 산학협력단

연구기간 2009.09.30 ~ 2015.09.29

명세서

청구범위

청구항 1

고분자 전해질막; 제1 전극; 및 제2 전극을 포함하고,
제1 전극 및 제2 전극 중 하나 이상은 탄소 성분을 포함하며,
제1 전극 및 제2 전극 중 하나 이상은 비표면적이 4.0 내지 $5.5 \text{ m}^2/\text{g}$ 인 전지.

청구항 2

제 1 항에 있어서,
전지는 싸이클 횟수가 2회 이상일 때,
에너지 효율은 80% 이상이고,
쿨롱 효율은 93% 이상인 것을 특징으로 하는 전지.

청구항 3

고분자 전해질막; 제1 전극; 및 제2 전극을 포함하는 전지에 있어서,
상기 전지의 구성 요소 중 하나 이상에 500 내지 800 W의 출력 세기로, 1 내지 100 초 마이크로웨이브 방사 처리하는 단계를 포함하는 제 1 항에 따른 전지의 표면처리 방법.

청구항 4

제 3 항에 있어서,
마이크로웨이브 방사 처리하는 단계에서, 반응 가스를 주입하는 것을 특징으로 하는 전지의 표면처리 방법.

청구항 5

제 4 항에 있어서,
반응 가스는 아르곤, 질소, 산소 및 공기 중 하나 이상인 것을 특징으로 하는 전지의 표면처리 방법.

청구항 6

제 3 항에 있어서,
상기 전지는 고분자 전해질막의 일면 또는 양면에 촉매층을 포함하며,
상기 촉매층에 500 내지 800 W의 출력 세기로, 1 내지 100 초 마이크로웨이브 방사 처리하는 단계를 더 포함하는 전지의 표면처리 방법.

청구항 7

제 3 항에 있어서,

제1 전극 및 제2 전극 중 하나 이상에 500 내지 800 W의 출력 세기로, 1 내지 100 초 마이크로웨이브 방사 처리하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 전지의 표면처리 방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 전지 및 상기 전지의 표면처리 방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 전지는 21세기 인류의 생활과 밀접한 전자기기의 휴대화, 고성능화, 경박 단소화를 위한 에너지원으로서 그 활용도가 크고, 상기 목적을 달성하기 위해서는 전지의 고성능화가 필수적이다. 이를 위해, 상기 휴대화, 고성능화, 경박 단소화를 위한 전지로는 일반 전지 뿐만 아니라 2차 전지 또는 연료 전지가 연구 및 개발 대상이 되고 있다.

[0003] *특히, 2차 전지의 경우, 자원의 재활용 및 환경오염 방지의 측면에서 그 중요성이 부각되고 있으며, 상기 휴대형 통신기기에 대한 전지뿐만 아니라 전력 저장용 전지로서도 그 중요성이 크게 인식되어 오고 있다.

[0004] 상기 2차 전지 내부의 전기화학 반응은 전극의 빠른 이온의 전달 및 충·방전 속도 향상 등의 활성도를 높일 수 있는 방법에 대한 연구가 필요한 실정이다. 따라서, 적절한 재료의 사용과 그 성능 향상이 전지 개발의 핵심이라고 할 수 있다.

[0005] 또한, 연료전지는 연료가 풍부하고, 다른 에너지 장치에 비해 효율이 높으며, 소음과 공해가 없다. 또한, 소형화부터 대형화까지 다양한 크기와 출력특성을 가지고 있어 세계 여러 국가에서 수소 인프라 구축과 연료전지의 양산 기술 개발이 활발하게 진행되고 있다.

[0006] 연료전지는 전해질 종류, 운전 온도와 사용되는 연료에 따라, 고체 산화물형 연료전지(Solid oxide fuel cell, SOFC), 용융 탄산염형 연료전지(Molten carbonate fuel cell, MCFC), 알칼리형 연료전지(Alkaline fuel cell, AFC), 인산형 연료전지(Phosphoric acid fuel cell, PAFC), 고분자 전해질막 연료전지(Polymer electrolyte membrane fuel cell, PEMFC)로 구분할 수 있다.

[0007] 특히, 고분자 전해질막 연료전지는 가스투과가 일어나지 않으면서 수소이온 전도성을 가진 막을 전해질로 사용하는 연료전지로서, 다른 연료전지에 비해 낮은 온도에서 운전되고 높은 발전 효율과 전류 출력 밀도를 가지며 구동 및 정지가 용이하다. 또한, 전지의 구조 설계가 복잡하지 않기 때문에 소형화가 가능하다. 이러한 장점들로 인해 고분자 전해질막 연료전지는 자동차뿐만 아니라 발전용, 휴대용 기기 등 다양한 분야에 응용되고 있다.

[0008] 이러한 연료 전지를 구성하는 물질들은, 빠른 이온의 전달, 충·방전 속도 향상, 안전성 및 내구성을 충족시킬 수 있는 소재를 요구하고 있다. 이러한 요구를 충족하고자 최근 높은 전도성, 기공구조의 제어용이 및 높은 화학적 안정성을 갖는 물질의 연구가 활발히 진행 중에 있다. 또한, 전기화학적 특성을 개선하기 위하여 전극 표면처리하는 방법 등의 많은 연구가 진행 중이다. 지금까지 대부분 전극의 표면처리 방법으로는 열처리 건식방법을 사용하였다. 그러나, 이러한 열처리 방식은 비교적 오랜 시간 동안 준비과정을 거치게 되는 단점이 있다.

선행기술문헌

특허문헌

[0009] (특허문헌 0001) 한국공개특허 제2011-0114992호

발명의 내용

해결하려는 과제

[0010] 본 발명은 전지 및 상기 전지의 표면처리 방법에 관한 것으로, 상기 전지에 마이크로웨이브 방사 처리를 통해

표면처리할 수 있다.

과제의 해결 수단

- [0011] 본 발명은 전지 및 상기 전지의 표면처리 방법을 제공할 수 있다.
- [0012] 일 실시예에서, 상기 전지는,
- [0013] 고분자 전해질막; 제1 전극; 및 제2 전극을 포함하고,
- [0014] 고분자 전해질막의 일면 또는 양면에 촉매층을 포함하며,
- [0015] 계면 저항이 0.05 내지 0.15 Ω 일 수 있다.
- [0016] 다른 일 실시예에서, 상기 전지는,
- [0017] 고분자 전해질막; 제1 전극; 및 제2 전극을 포함하고,
- [0018] 제1 전극 및 제2 전극 중 하나 이상은 탄소 성분을 포함할 수 있다.
- [0019] 상기 전지의 표면처리 방법의 하나의 예로서,
- [0020] 고분자 전해질막; 제1 전극; 및 제2 전극을 포함하는 전지에 있어서,
- [0021] 상기 연료전지의 구성 요소 중 하나 이상에 500 내지 800 W의 출력 세기로, 1 내지 100 초 마이크로웨이브 방사 처리하는 단계를 포함하는 전지의 표면처리 방법을 제공할 수 있다.

발명의 효과

- [0022] 본 발명에 따른 전지는 짧은 시간 내의 마이크로웨이브 방사 처리를 통해, 이온의 전달 속도, 충·방전 속도 및 촉매 활성도를 증가시켜, 전지의 전기 전도도 및 효율을 높일 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0023] 도 1은 일 실시예에서, 마이크로웨이브 방사 처리 방법에 대한 모식도이다.
- 도 2는 일 실시예에서, 전지의 기공도 측정 실험에 대한 그래프이다.
- 도 3은 일 실시예에서, 전지의 계면 저항 측정 실험에 대한 그래프이다.
- 도 4는 일 실시예에서, 전지의 전류 전압 특성 측정 실험에 대한 그래프이다.
- 도 5는 일 실시예에서, 전지의 순환 전위 측정 실험에 대한 그래프이다.
- 도 6은 일 실시예에서, 전지의 에너지 효율 측정 실험에 대한 그래프이다.
- 도 7은 일 실시예에서, 전지의 쿨롱 효율 측정 실험에 대한 그래프이다.
- 도 8은 일 실시예에서, 전지의 전압 효율 측정 실험에 대한 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0024] 본 발명은 전지 및 상기 전지의 표면처리 방법에 관한 것이다.
- [0025] 상기 연료 전지의 하나의 예로서,
- [0026] 고분자 전해질막; 제1 전극; 및 제2 전극을 포함하고,
- [0027] 고분자 전해질막의 일면 또는 양면에 촉매층을 포함하며,
- [0028] 계면 저항이 0.05 내지 0.15 Ω 인 전지를 제공할 수 있다.
- [0029] 예를 들어, 상기 전지는 연료 전지일 수 있다. 연료 전지는, 고분자 전해질막을 사이에 두고 양쪽으로 산화전극(Anode)(제1 전극) 및 환원전극(Cathode)(제2 전극)이 각각 위치한 것으로, 산화전극에서 수소의 산화반응에 의해 생긴 전자가 외부 회로를 통해 환원전극으로 이동하게 되고, 환원전극에서는 산소의 환원반응이 일어나 물이 생성되어 전자가 이동하는 원리로 전기에너지가 발생할 수 있다.

- [0030] 상기 고분자 전해질막은 수소이온 전도성 고분자를 포함할 수 있다. 예를 들어, 불소계 고분자, 벤즈이미다졸계 고분자, 폴리이미드계 고분자, 폴리에테르이미드계 고분자, 폴리페닐렌설파이드계 고분자, 폴리술폰계 고분자, 폴리에테르술폰계 고분자, 폴리에테르케톤계 고분자, 폴리에테르-에테르케톤계 고분자 및 폴리페닐퀴놀살린계 고분자 중 1 종 이상을 포함할 수 있다.
- [0031] 구체적으로, 술폰화 테트라플루오로에틸렌, 술폰화 폴리술폰, 술폰화 폴리이미드, 술폰화 폴리에테르 술폰, 술폰화 폴리에테르 에테르 케톤 및 인산염 착화 폴리벤즈이미다졸 중 1 종 이상을 포함할 수 있다.
- [0032] 상기 수소이온 전도성 고분자는 합성하여 사용하건, 시판중인 화합물을 사용할 수 있다. 예를 들어, Dupont사의 나피온(Nafion), 3M사의 3M Ionomer, 솔베이(solvay)사의 아퀴비온(Aquivion) 등이 대표적이며, 구체적으로, 짧은 사슬 형태의 아퀴비온을 사용할 수 있다.
- [0033] 상기 촉매층은 고분자 전해질막의 일면 또는 양면에 형성될 수 있으며, 예를 들어, 용매에 용해 또는 분산시킨 액상의 촉매 혼합액을 고분자 전해질막의 일면 또는 양면에 분사하여 촉매층을 형성하는 방법, 상기 촉매 혼합물을 필름에 도포하여 촉매층을 형성하고 이 촉매층을 전해질막 표면에 전사시키는 방법 및 촉매를 고분자 전해질막의 표면에 살포한 후 가열압착하여 촉매층을 형성하는 방법 등 다양한 방법으로 제조될 수 있다.
- [0034] 상기 계면 저항은 고분자 전해질막과 촉매층 간의 계면에 생기는 저항을 의미할 수 있다. 이는, 고분자 전해질막과 양 전극 간의 저항을 의미할 수 있다. 상기 계면 저항이 높을 경우, 고분자 전해질막과 촉매층 간에 전자의 이동도가 낮아지며, 결과적으로 고분자 전해질막과 양 전극 간의 전자 이동을 방해하여 연료 전지의 전기 전도도가 저하될 수 있다.
- [0035] 예를 들어, 상기 계면 저항은 0.05 내지 0.15 Ω , 0.06 내지 0.14 Ω , 0.07 내지 0.13 Ω 또는 0.07 내지 0.12 Ω 범위일 수 있다.
- [0036] 고분자 전해질막, 산화전극, 환원전극 및 촉매층 중 하나 이상은 마이크로웨이브 방사 처리된 것일 수 있다.
- [0037] 마이크로웨이브 방사 처리는, 300 내지 300,000 MHz의 진동수를 갖는 전자기파를 이용하여 물질의 온성 또는 극성 물질에 초당 2.45×10^9 의 진동 또는 회전운동을 일으키게 하며, 이 때 발생하는 마찰열에 의해 온도 상승이 빠르게 일어난다.
- [0038] 상기 마이크로웨이브 방사 처리는 500 내지 800 W의 출력 세기로, 1 내지 100 초 동안 수행될 수 있다. 고분자 전해질막, 산화전극, 환원전극 및 촉매층 중 하나 이상에 마이크로웨이브 방사 처리를 함으로써, 짧은 시간 내에 연료 전지를 구성하는 요소들의 전기화학적 특성을 높일 수 있다.
- [0039] 구체적으로, 촉매층에 마이크로웨이브 방사 처리를 할 경우, 촉매층의 기공도를 조절하여 물질전달을 촉진시키고, 연료 전지 촉매층의 전기 전도성을 향상시킬 수 있다.
- [0040] 촉매층은 복합 탄소 지지체에 금속 나노 입자가 담지된 촉매를 포함할 수 있다.
- [0041] 상기 촉매층은,
- [0042] 촉매층을 구성하는 입자 표면에 형성된 표면기공;
- [0043] 복수 개의 입자로 이루어진 입자군 내의 입자 사이의 1차 기공; 및
- [0044] 상기 입자로 이루어진 입자군들 사이의 2차 기공을 포함하고,
- [0045] 상기 1차 기공의 Log Differential Volume 값은 $0.015 \text{ cm}^3/\text{g}$ 이상이고,
- [0046] 상기 2차 기공의 Log Differential Volume 값은 $0.012 \text{ cm}^3/\text{g}$ 이상일 수 있다.
- [0047] 촉매층은, 촉매층을 이루는 복합 탄소 지지체에 금속 나노 입자가 담지된 촉매는 탄소의 표면에 형성된 표면기공, 상기 탄소들이 이루어진 탄소군 내에서 각 탄소 사이의 1차 기공 및 상기 탄소들로 이루어진 탄소군들 사이의 2차 기공을 포함할 수 있다. 이 때, 상기 촉매층에 마이크로웨이브 방사 처리하여 1차 기공 및 2차 기공의 기공도를 조절할 수 있다. 예를 들어, 상기 표면 기공의 크기는 약 3 내지 4 nm 범위이고, 제1 기공의 크기는 약 5 내지 40 nm이며, 제2 기공의 크기는 40 내지 100 nm 범위일 수 있다.
- [0048] 예를 들어, 상기 1차 기공의 Log Differential Volume 값은 0.015 내지 0.020 cm^3/g , 0.016 내지 0.020 cm^3/g

또는 0.016 내지 0.018 cm^3/g 일 수 있다.

- [0049] 또한, 상기 2차 기공의 Log Differential Volume 값은 0.012 내지 0.018 cm^3/g , 0.014 내지 0.018 cm^3/g 또는 0.014 내지 0.016 cm^3/g 일 수 있다.
- [0050] 상기 범위 내의 Log Differential Volume 값은, 마이크로웨이브 방사 처리를 통해 상기 범위 내에서 기공도를 조절할 수 있다는 것을 의미할 수 있다.
- [0051] 상기 복합 탄소 지지체는 활성 탄소 섬유(ACF) 및 그래핀(Graphene)의 복합체일 수 있다. 또한, 상기 금속 나노 입자는 백금(Pt), 이리듐(Ir), 구리(Cu), 코발트(Co), 몰리브덴(Mo), 티타늄(Ti) 및 니오븀(Nb)을 포함할 수 있다. 구체적으로, 상기 촉매층은 백금 나노 입자가 담지된 복합탄소 지지체(Pt/ACF/Graphene)를 포함할 수 있다.
- [0052] 본 발명에 따른 연료 전지는 예를 들어, 막 전극 집합체일 수 있다.
- [0053] 또한, 본 발명은, 고분자 전해질막; 제1 전극; 및 제2 전극을 포함하고,
- [0054] 제1 전극 및 제2 전극 중 하나 이상은 탄소 성분을 포함하며,
- [0055] 단위 질량당 표면적은 4.0 m^2/g 이상인 전지를 제공할 수 있다.
- [0056] 예를 들어, 상기 전지는 2차 전지일 수 있다. 구체적으로, 2차 전지는, 양 전극(제1 전극, 제2 전극)의 접촉을 막으며, 양 전극 사이에 이온의 이동을 원활하게 하는 고분자 전해질막이 위치한 구조일 수 있다. 그 중, 제1 전극 및 제2 전극을 구성하는 물질은 탄소 성분을 포함할 수 있다. 예를 들어, 상기 전극에 포함되는 탄소 성분은, 그래파이트, 활성 탄소, 카본 블랙, 탄소 나노튜브 및 그래핀 중 1 종 이상을 포함할 수 있다.
- [0057] 상기 탄소 성분은 마이크로웨이브 방사 처리를 통해, 탄소 표면을 활성화하여 다양한 관능기를 형성하며, 표면적이 증가할 수 있다.
- [0058] 예를 들어, 상기 단위 질량당 표면적은 4.0 내지 5.5 m^2/g , 4.1 내지 5.0 m^2/g , 4.4 내지 4.8 m^2/g 일 수 있다. 상기 범위 내의 높은 표면적을 통해, 전지의 출력 특성을 향상시켜 전극의 전기화학적 반응의 효율을 향상시킬 수 있다.
- [0059] 상기 전지는 사이클 횟수가 2회 이상일 때,
- [0060] 에너지 효율(energy efficiency)은 80% 이상이고,
- [0061] 쿨롱 효율(coulombic efficiency)은 93% 이상일 수 있다.
- [0062] 예를 들어, 상기 에너지 효율은 80 내지 99%, 83 내지 95% 또는 85 내지 90%일 수 있으며, 이는, 전지의 사이클 횟수가 증가함에 따라 저하될 수 있는 에너지 효율을 80% 이상으로 유지할 수 있다는 것을 의미할 수 있다. 또한, 높은 에너지 효율은, 본 발명에 따른 연료 전지에서, 열화 현상 및 촉매 활성 저하가 낮은 것을 의미할 수 있다.
- [0063] 또한, 상기 쿨롱 효율은 93 내지 99%, 94 내지 98%, 94 내지 96%일 수 있다. 상기 쿨롱 효율은 방전 용량 대비 충전 용량을 나타내는 것으로, 상기 100%에 가까운 쿨롱 효율을 통해, 본 발명에 따른 전지에서, 과충전을 방지하고, 충방전 순환 안정성을 구현한 것을 알 수 있다.
- [0064] 또한, 상기 전지는 사이클 횟수가 1회 이상일 때,
- [0065] 전압 효율은 86% 이상일 수 있다.
- [0066] 예를 들어, 상기 전압 효율은 86 내지 99%, 88 내지 95% 또는 88 내지 90%일 수 있다.
- [0067] 본 발명에 따른 2차 전지는 예를 들어, 니켈전지, 이온전지, 리튬이온전지, 폴리머전지, 리튬폴리머전지, 리튬 설퍼전지 또는 레독스 플로우 전지일 수 있으며, 구체적으로, 레독스 플로우 전지일 수 있다.

- [0068] 또한, 본 발명의 전지의 표면처리 방법의 하나의 예로서,
- [0069] 고분자 전해질막; 제1 전극; 및 제2 전극을 포함하는 전지에 있어서,
- [0070] 상기 전지의 구성 요소 중 하나 이상에 500 내지 800 W의 출력 세기로, 1 내지 100 초 마이크로웨이브 방사 처리하는 단계를 포함하는 전지의 표면처리 방법을 제공할 수 있다.
- [0071] 고분자 전해질막, 제1 전극 및 제2 전극에 대한 설명의 상기 설명한 바와 동일 할 수 있다.
- [0072] 상기 마이크로웨이브 방사 처리하는 단계는, 반응 가스를 주입하면서 진행될 수 있다.
- [0073] 예를 들어, 상기 반응 가스는 아르곤, 질소, 산소 및 공기 중 하나 이상을 포함할 수 있다. 이를 통해, 전지를 구성하는 요소들 중 하나 이상에 선택적으로 작용기를 도입하여 표면적의 증가를 구현할 수 있다. 상기 높은 표면적을 통해, 연료 전지의 출력 특성을 향상시켜 전극의 전기화학적 반응의 효율을 향상시킬 수 있다.
- [0074] 상기 전지를 구성하는 물질들 중 하나 이상을 500 내지 800 W의 출력 세기로, 1 내지 100 초 동안 마이크로웨이브 처리함으로써 상기 전지의 특성을 구현할 수 있다. 이는, 초 단위의 짧은 시간 내에 전지를 구성하는 요소들의 전기화학적 특성을 높일 수 있다.
- [0075] 상기 전지는 고분자 전해질막의 일면 또는 양면에 촉매층을 포함하며,
- [0076] 상기 촉매층에 500 내지 800 W의 출력 세기로, 1 내지 100 초 마이크로웨이브 방사 처리하는 단계를 더 포함할 수 있다.
- [0077] 예를 들어, 상기 촉매층은 복합 탄소 지지체에 금속 나노 입자가 담지된 촉매로, 백금 입자가 담지된 복합 탄소 지지체(Pt/ACF/Graphene)를 포함할 수 있다. 상기 복합 탄소 지지체는 활성 탄소 섬유(ACF) 및 그래핀(Graphene)이 결합하여 제조되며, 이에 백금(Pt) 나노 입자를 담지하여 Pt/ACF/Graphene을 제조할 수 있으며, 이 때, 500 내지 800 W의 출력 세기로, 1 내지 100 초 동안 마이크로웨이브 처리함으로써 각각의 물질 간에 결합력을 높일 수 있다. 또한, 이를 통해 제조된 Pt/ACF/Graphene은 기공도가 증가하여, 높은 촉매 활성도를 구현할 수 있다.
- [0078] 또한, 제1 전극 및 제2 전극 중 하나 이상에 500 내지 800 W의 출력 세기로, 1 내지 100 초 마이크로웨이브 방사 처리하는 단계를 포함할 수 있다. 예를 들어, 탄소를 포함하는 제1 전극 및 제2 전극을 갖는 2차 전지는, 상기 전극에 반응 가스 주입 하에, 마이크로웨이브 방사 처리함으로써, 탄소 표면에 작용기를 부여하여 표면적을 증가시킬 수 있다.
- [0079] 이하, 상기 서술한 내용을 바탕으로, 실시예와 도면을 참조하여 본 발명을 더욱 상세하게 설명한다. 하기 실시예에는 본 발명을 예시하기 위한 것으로, 본 발명의 권리범위를 한정하려는 것은 아니다.
- [0080] **제조예**
- [0081] 복합 탄소 지지체로서, 활성 탄소 섬유(ACF) 및 그래핀(Graphene)을 7:3의 중량비로 혼합하고, 800 W 조건으로 90 초 동안 마이크로웨이브 방사 처리하여 제조하였다. 그런 다음, 폴리올 공정(polyol process)를 통해, 상기 복합 탄소 지지체에 백금(Pt) 나노 입자를 담지시켜 Pt/ACF/Graphene을 제조하였다.
- [0082] **실시예 1**
- [0083] 상용화된 기술은 CCM(catalyst coated membrane) 방식을 이용하여 막 전극 집합체(MEA)를 제조하였다. 구체적으로, 산화전극 촉매로서, 상용화된 제품인 40 중량% Pt/C를 사용하였으며, 환원전극 촉매로서, 상기 제조예에서 제조된 촉매를 사용하였다. 상기 각각의 촉매들은 슬러리 형태로 제조하여 솔베이(solvol) 사의 아퀴비온(Aquivion) 막을 기준으로, 산화전극 촉매는 산화전극 쪽에, 환원전극 촉매는 환원전극 쪽에 스프레이 건을 이용하여 각각 0.4 mg/cm²의 양으로 도포하였다. 그런 다음, 전극과 전해질 간의 저항을 줄이기 위하여 125℃에서 3 분간 68.6 MPa의 압력으로 가열 압착하여 MEA를 제조하였다.
- [0084] 그런 다음, 상기 제조된 MEA를 테플론(Teflon) 케이스에 넣고, 마이크로웨이브 반응기에 위치시켜, 500 W의 출

력세기로 5 초간 처리하였다. 이 때, 상기 마이크로웨이브 방사 처리는 질소 분위기 하에서 수행되었다. 상기 마이크로웨이브 방사 처리하는 모식도를 도 1에 나타내었다. 도 1을 보면, 마이크로웨이브 반응기 내에 전극물질(a)을 케이스(20)에 넣어, 연속적인 반응 가스의 유입(c) 및 유출(d) 하에서 마이크로웨이브 방사 처리하는 것을 확인할 수 있다.

[0085] 실시예 2

상기 실시예 1과 동일한 방법으로 제조하되, 마이크로웨이브 방사의 출력 세기를 650 W로 달리하여 제조하였다.

[0087] 실시예 3

상기 실시예 1과 동일한 방법으로 제조하되, 마이크로웨이브 방사의 출력 세기를 800 W로 달리하여 제조하였다.

[0089] 실시예 4

탄소를 이용한 산화전극 및 환원전극을 형성하는 레독스 플로우 전지(redox flow battery)를 제조하였다. 전극을 제조하기 위하여 가로 세로 3 cm의 탄소 전극을 밀봉하고, 산소/아르곤 가스를 이용하여 퍼지하였다. 이를 통해, 상기 탄소 전극 표면의 산소를 제거하였다. 그런 다음, 산소/아르곤 가스 분위기 하에서, 500 W의 출력 세기로 60 초간 마이크로웨이브 방사 처리하였다.

그런 다음, 전극과 같은 크기의 가로 세로 3 cm의 솔베이(solvay) 사의 아퀴비온(Aquivion) 막을 사이에 두고 양쪽으로 상기 제조된 분리판 및 탄소 전극을 차례대로 위치하여 레독스 플로우 전지를 제조하였다.

[0092] 실시예 5

상기 실시예 4와 동일한 방법으로 제조하되, 마이크로웨이브 방사의 출력 세기를 650 W로 달리하여 제조하였다.

[0094] 실시예 6

상기 실시예 4와 동일한 방법으로 제조하되, 마이크로웨이브 방사의 출력 세기를 800 W로 달리하여 제조하였다.

[0096] 비교예 1

상기 실시예 1과 동일한 방법으로 제조하되, 마이크로웨이브 방사 처리하는 과정을 수행하지 않았다.

[0098] 비교예 2

상기 실시예 4와 동일한 방법으로 제조하되, 마이크로웨이브 방사 처리하는 과정을 수행하지 않았다.

[0100] 실험예 1

상기 실시예 1(500 W), 실시예 2(650 W), 실시예 3(800 W) 및 비교예 1(RAW)에서 제조한 연료 전지에 대하여, 표면기공, 1차 기공 및 2차 기공에 대하여 Log differential Volume을 측정하였다. 그 결과는 도 2에 나타내었다. 도 2를 보면, 출력 세기가 500 W에서 800 W로 증가할수록 각 기공의 크기가 증가하는 것을 확인할 수 있다.

[0102] 실험예 2

상기 실시예 1 내지 실시예 3과 비교예 1에서 제조한 연료 전지에 대하여, 계면 저항을 측정 실험을 하였다. 그

결과는 도 3에 나타내었다. 도 3을 보면, 가로축의 $Z'(\Omega)$ 은 실수 부분의 임피던스(real impedance)를 의미하고, 세로축의 $Z''(\Omega)$ 은 허수 부분의 임피던스(imaginary impedance)를 의미한다.

[0104] 마이크로웨이브 출력 세기를 500 W로 처리한 경우, 반응의 크기가 가장 작아지는 것을 확인할 수 있으며, 이는, 저항이 감소되어 높은 효율의 연료 전지를 구현할 수 있음을 알 수 있다.

[0105] 실험예 3

[0106] 상기 실시예 1 내지 실시예 3과 비교예 1에서 제조한 연료 전지에 대하여, 전류 전압 특성 측정 실험을 하였다. 그 결과는 도 4에 나타내었다. 도 4를 보면, 동일한 전압에서, 마이크로웨이브 출력 세기를 500 W로 처리한 경우, 가장 우수한 전류 밀도를 나타내는 것을 확인할 수 있었다.

[0107] 실험예 4

[0108] 상기 실시예 1 내지 실시예 3과 비교예 1에서 제조한 연료 전지에 대하여, 순환 전위(cyclic voltammetry, CV) 측정 실험을 하였다. 그 결과는 도 5에 나타내었다. 도 5를 보면, 마이크로웨이브 출력 세기를 500 W로 처리한 경우, 촉매의 유효면적이 가장 넓은 것을 확인할 수 있었다. 이는, 마이크로웨이브 방사를 통해 촉매활성도가 증가하였다는 것을 의미할 수 있다.

[0109] 실험예 5

[0110] 상기 실시예 4(500 W) 및 실시예 5(650 W)과 비교예 2(RAW)에서 제조한 레독스 플로우 전지에 대하여, 에너지 효율(energy efficiency) 측정 실험을 하였다. 그 결과는 도 6에 나타내었다. 도 6을 보면, 본원에 따른 실시예에서 제조된 레독스 플로우 전지의 에너지 효율은 비교예에서 제조된 레독스 플로우 전지에 비해 현저히 높은 것을 확인할 수 있었다.

[0111] 실험예 6

[0112] 상기 실시예 4 및 실시예 5과 비교예 2에서 제조한 레독스 플로우 전지에 대하여, 쿨롬 효율(coulombic efficiency) 측정 실험을 하였다. 그 결과는 도 7에 나타내었다. 도 7을 보면, 본원에 따른 실시예에서 제조된 레독스 플로우 전지의 쿨롬 효율은 비교예에서 제조된 레독스 플로우 전지에 비해 현저히 높은 것을 확인할 수 있었다.

[0113] 실험예 7

[0114] 상기 실시예 4 및 실시예 5과 비교예 2에서 제조한 레독스 플로우 전지에 대하여, 전압 효율(voltage efficiency) 측정 실험을 하였다. 그 결과는 도 8에 나타내었다. 도 8을 보면, 본원에 따른 실시예에서 제조된 레독스 플로우 전지의 전압 효율은 비교예에서 제조된 레독스 플로우 전지에 비해 현저히 높은 것을 확인할 수 있었다.

[0115] 상기 실시예 5 내지 7을 통해, 본원에 따른 레독스 플로우 전지의 사이클 특성이 우수하다는 것을 확인할 수 있었다.

[0116] 실험예 8

[0117] 상기 실시예 4 및 실시예 5과 비교예 2에서 제조한 레독스 플로우 전지에 대하여, 전극의 표면적을 측정하였다. 그 결과는 하기 표 1에 나타내었다.

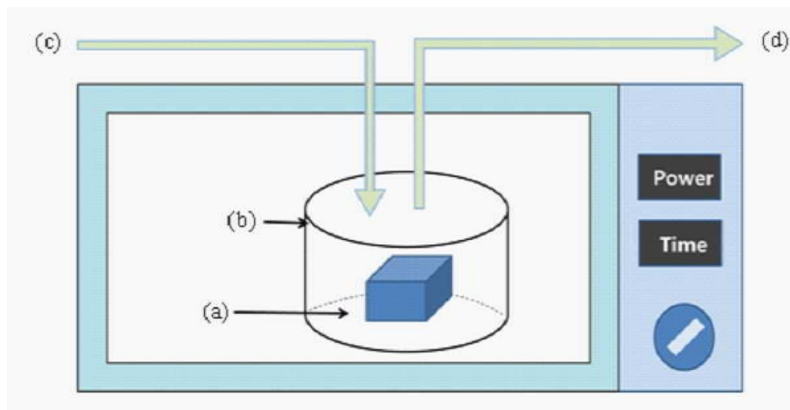
표 1

	실시예 4	실시예 5	비교예 1
표면적 (m^2/g)	4.46	4.63	2.72

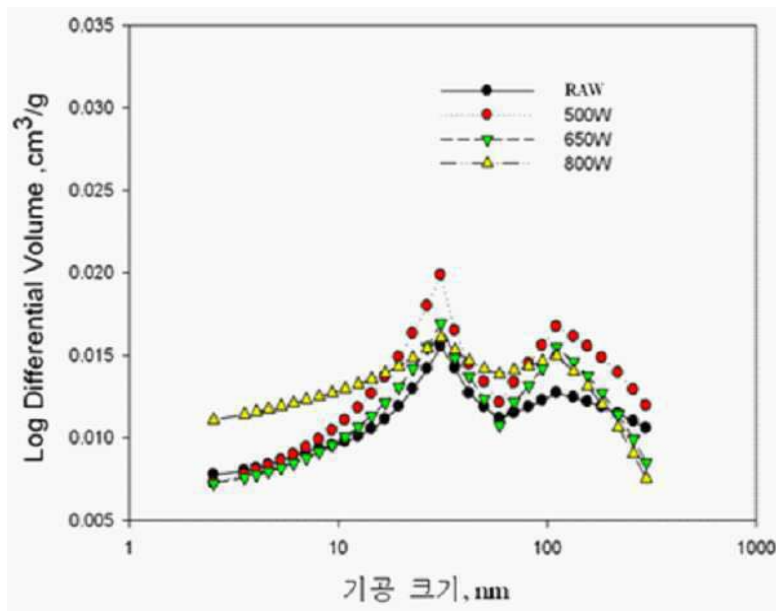
표 1을 보면, 본원에 따른 실시예에서 제조된 레독스 플로우 전지의 전극의 표면적은 비교예에서 제조된 레독스 플로우 전지에 비해 약 2배 이상 넓은 것을 확인할 수 있었다.

도면

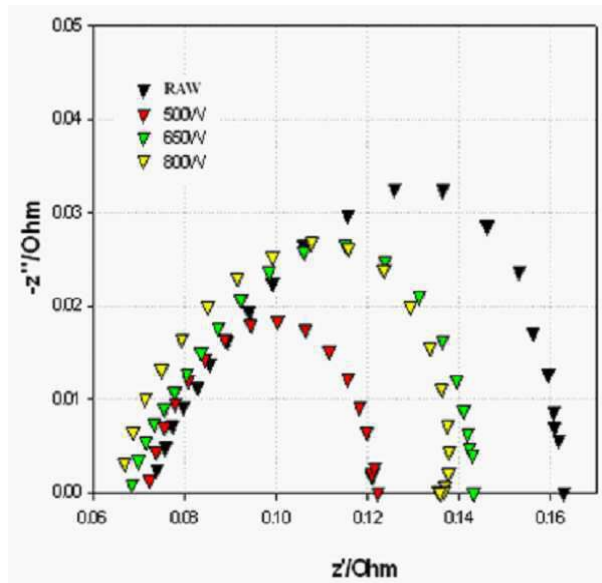
도면1



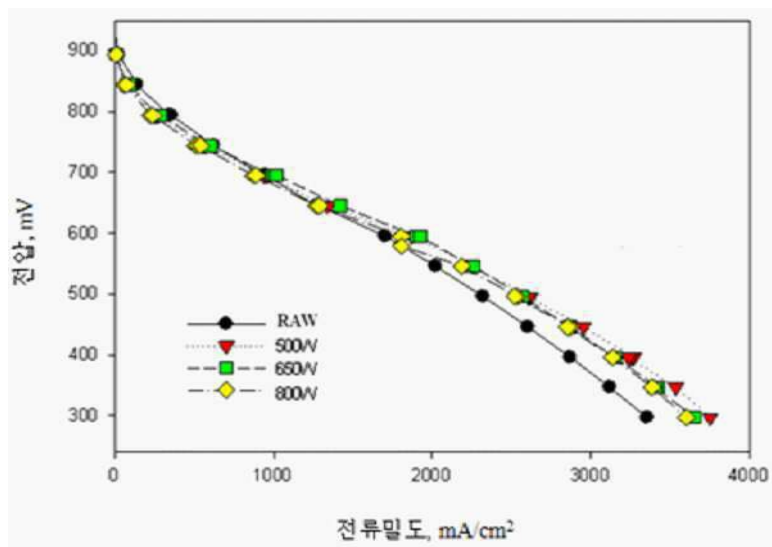
도면2



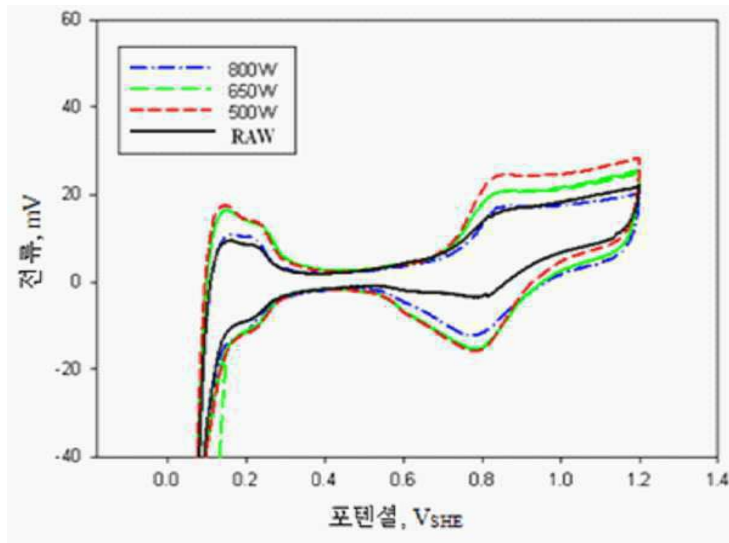
도면3



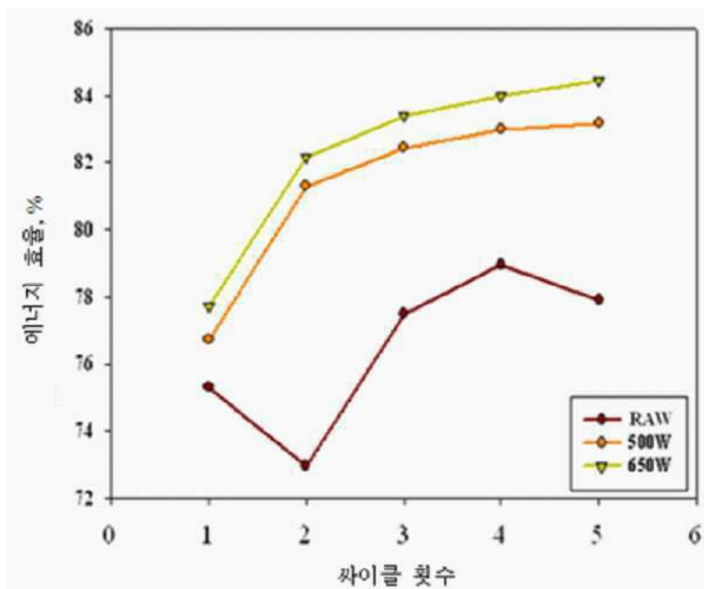
도면4



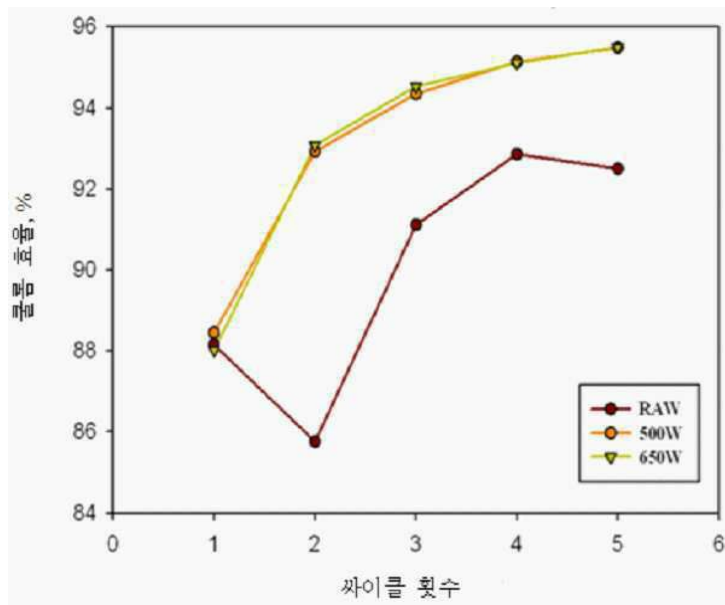
도면5



도면6



도면7



도면8

