



(19)대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(51) 。 Int. Cl. H01M 4/86 (2006.01) H01M 4/88 (2006.01)	(45) 공고일자 (11) 등록번호 (24) 등록일자	2007년01월19일 10-0671494 2007년01월12일
(21) 출원번호 (22) 출원일자 심사청구일자	10-2005-0007507 2005년01월27일 2005년01월27일	(65) 공개번호 (43) 공개일자 10-2006-0086642 2006년08월01일
(73) 특허권자	한국과학기술연구원 서울 성북구 하월곡2동 39-1	
(72) 발명자	오인환 서울 노원구 중계본동 신안동진아파트 101-803 조은애 서울 성북구 정릉동 대우아파트 105동 203호 김형준 경기 수원시 영통구 망포동 690(8/2) 하홍용 서울 노원구 상계동 현대2차 아파트 202-1408 홍성안 서울 강남구 삼성동 78-4 청구아파트 102-1301 임태훈 서울 송파구 문정동 150 웨밀리아아파트 220-603호 남석우 서울 동대문구 회기동 신현대 APT 6-1506 윤성필 경기 성남시 분당구 정자동 상록마을라이프 110동 1401호 한중희 서울 강남구 삼성동 126 세방하이빌 702호 이재영 인천 부평구 청천동 대우아파트 108동 2202호 함형철 강원 춘천시 소양로2가 현대아파트 107-402	
(74) 대리인	김영철 김 순 영	

(56) 선행기술조사문헌

KR100398113 B1

KR1020020096195 A

KR1020030073763 A

* 심사관에 의하여 인용된 문헌

심사관 : 박형달

전체 청구항 수 : 총 18 항

(54) 연료전지용 다층 전극 및 그 제조 방법

(57) 요약

본 발명에서는, 촉매슬러리의 제조시, 소정 EW를 갖는 즉, 이온전도도와 물 흡수성이 낮은 퍼플루오리네이티드 설퍼닉 액시드 나피온 이오노머를 혼합하여 기체확산층인 탄소종이에 도포하고, 이후 상기 촉매층 표면에는, 상기 소정 EW보다 상대적으로 EW가 낮은 즉, 이온전도도와 물 흡수성이 높은 나피온 이오노머를 도포하고, 이와 같이 제조된 전극을 120~170°C의 온도범위에서 0.5~24시간 열처리한 연료전지용 다층 전극 및 그 제조방법을 개시한다. 본 발명의 연료전지용 다층 전극 및 그 제조 방법에 따르면 상온 무가습 운전이 가능하고, 전극 촉매층의 홍수 현상을 방지할 수 있으며, 전극 촉매층 손실 방지로 인하여 장기운전특성이 증가하는 효과를 달성한다.

대표도

도 1

특허청구의 범위

청구항 1.

기체확산층(1);

상기 기체확산층(1) 상에 형성되는, 촉매(2) 및 나피온 이오노머(3)의 용액을 포함하는 촉매 슬러리가 도포된 촉매층; 및

상기 촉매층상에 형성되는, 나피온 이오노머(4)의 용액의 코팅층;으로 구성되고,

상기 코팅층의 나피온 이오노머(4)의 EW 값이 상기 촉매층의 나피온 이오노머(3)의 EW 값보다 작도록 한 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극.

청구항 2.

제 1 항에 있어서, 상기 전극은,

120~170°C 에서 열처리된 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극.

청구항 3.

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서, 상기 기체확산층(1)은,

20~60wt% PTFE 탄소종이 또는 탄소천인 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극.

청구항 4.

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서, 상기 촉매슬러리는,

상기 촉매(2)가 20~60wt%의 Pt/C이고, 상기 나피온 이오노머(3) 용액은, 상기 촉매층의 나피온 이오노머(3) 및 상기 코팅층의 나피온 이오노머(4)의 양을 합한 나피온 이오노머 총량이 상기 Pt/C 촉매 무게의 20~50%일 때 상기 나피온 이오노머 총량의 1/12~4/12 량의, 5wt% 이하, EW가 1,000~1,300인 나피온 이오노머(3) 용액인 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극.

청구항 5.

제 4 항에 있어서, 상기 나피온 이오노머(4) 용액은,

상기 나피온 이오노머 총량중 상기 촉매층의 나피온 이오노머(3) 양을 제외한 나머지 양의, 5wt% 이하, EW가 400~1,000인 나피온 이오노머(4) 용액인 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극.

청구항 6.

나피온 이오노머 용액 및 촉매를 포함하는 촉매슬러리를 제조하는 단계(S1);

상기 촉매슬러리를 기체확산층에 도포하는 단계(S2);

상기 기체확산층에 도포된 촉매슬러리를 1차로 건조하여 촉매층을 형성하는 단계(S3);

상기 건조된 촉매층 표면에 나피온 이오노머 용액을 도포하는 단계(S4);

상기 도포된 나피온 이오노머 용액을 2차로 건조하여 전극을 제조하는 단계(S5); 및

상기 건조된 전극을 열처리하는 단계(S6);를 포함하고,

상기 S4 단계에서의 나피온 이오노머의 EW 값이 상기 S1 단계에서의 나피온 이오노머의 EW 값보다 작도록 하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법.

청구항 7.

제 6 항에 있어서, 상기 S1 단계는,

20~60wt% Pt/C 촉매; 상기 S1 단계의 나피온 이오노머 및 상기 S4 단계의 나피온 이오노머의 양을 합한 나피온 이오노머 총량이 상기 Pt/C 촉매 무게의 20~50%일 때 상기 나피온 이오노머 총량의 1/12~4/12 량의, 5wt% 이하, EW가 1,000~1,300인 나피온 이오노머; 및 IPA 또는 EtOH 용매;를 함께 교반하여 촉매슬러리를 제조하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법.

청구항 8.

제 7 항에 있어서, 상기 S1 단계는,

20~40wt% Pt/C 촉매; 상기 나피온 이오노머 총량의 1/12~2/12 량의, 5wt% 이하, EW가 1,100~1,200인 나피온 이오노머; 및 IPA 또는 EtOH 용매;를 함께 교반하여 촉매슬러리를 제조하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법.

청구항 9.

제 7 항에 있어서, 상기 S2 단계는,

상기 촉매슬러리를, 20~60wt% PTFE 탄소종이 또는 탄소천으로 이루어지는 기체확산층에, 0.04~1.2mg-Pt/C/cm²의 로딩(loading)량으로 도포하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법.

청구항 10.

제 9 항에 있어서, 상기 S2 단계는,

상기 촉매슬러리를, 20~40wt% PTFE 탄소종이 또는 탄소천으로 이루어지는 기체확산층에, 0.4~0.7mg-Pt/C/cm²의 로딩(loading)량으로 도포하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법.

청구항 11.

제 9 항에 있어서, 상기 S3 단계는,

60~80℃의 온도에서, 30분~24시간 건조하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법.

청구항 12.

제 11 항에 있어서, 상기 S3 단계는,

60~80℃의 온도에서, 1~2시간 건조하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법.

청구항 13.

제 11 항에 있어서, 상기 S4 단계는,

상기 나피온 이오노머 총량중 상기 S1 단계의 나피온 이오노머 양을 제외한 나머지 양의, 5wt% 이하, EW가 400~1,000인 나피온 이오노머; IPA 또는 EtOH 용매;를 함께 교반하여 나피온 이오노머 용액을 제조하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법.

청구항 14.

제 11 항에 있어서, 상기 S4 단계는,

상기 S1 단계에서, 20~40wt% Pt/C 촉매; 상기 나피온 이오노머 총량의 1/12~2/12 량의, 5wt% 이하, EW가 1,100~1,200인 나피온 이오노머; 및 IPA 또는 EtOH 용매;를 함께 교반하여 촉매슬러리를 제조하는 경우,

상기 나피온 이오노머 총량중 상기 S1 단계의 나피온 이오노머 양을 제외한 나머지 양의, 5wt% 이하, EW가 1,100~1,200인 나피온 이오노머; IPA 또는 EtOH 용매;를 함께 교반하여 나피온 이오노머 용액을 제조하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법.

청구항 15.

제 13 항에 있어서, 상기 S5 단계는,

상기 나피온 이오노모 용액을 도포한 후, 60~80℃의 온도에서 30분~24시간 건조하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법.

청구항 16.

제 15 항에 있어서, 상기 S5 단계는,

상기 나피온 이오노모 용액을 도포한 후, 60~80℃의 온도에서 1~2시간 건조하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법.

청구항 17.

제 15 항에 있어서, 상기 S6 단계는,

진공오븐에서 120~170℃ 범위로 0.5~24시간 열처리하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법.

청구항 18.

제 17 항에 있어서, 상기 S6 단계는,

150~170℃의 범위로 6~18시간 열처리하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법.

명세서

발명의 상세한 설명

발명의 목적

발명이 속하는 기술 및 그 분야의 종래기술

본 발명은 연료전지용 다층 전극 및 그 제조 방법에 관한 것으로, 상세하게는 전극 촉매층의 내부 및 표면에서 이오노머(ionomer)의 당량중량(Equivalent Weight; 이하 EW라고 한다)의 분포를 조절함으로써, 상온 무가습 운전이 가능하고, 전극 촉매층의 홍수 현상을 방지할 수 있으며, 전극 촉매층 손실 방지로 인하여 장기운전특성을 증가시킬 수 있는, 연료전지용 다층 전극 및 그 제조 방법에 관한 것이다.

종래에 연료전지용 전극의 제조에 관한 다음의 기술들이 소개된 바 있다.

예를 들어, P. Driven 등은 발수 처리된 다공성의 탄소 종이(carbon paper) 상부에 발수 처리된 탄소 분말을 도포하여 중간층을 형성한 후, 상기 탄소 분말층 상부에 촉매와 고분자 전해질(polymer electrolyte) 즉, EW가 높은 이오노머(예를 들어, EW=1,100)의 혼합물을 얇게 도포하여 전극을 제조하였다.

그리고, 이와 같이 제조된 연료극과 공기극 사이에 상용 전해질막을 놓은 후, 전해질의 유리전이온도 이상, 일정 압력하에서 핫프레싱(hot pressing)하여 MEA를 제조하였다<P.Driven and W.Engelen, US Patent No. 5,561,000 (1996) 참조>

상기와 같은 방법으로 전극을 제조할 경우, 전극 촉매층에 나피온 이오노머를 첨가함으로써 삼상계면을 증가시킬 수 있으며, 홍수 방지가 가능하다는 장점이 있다.

그러나, 상기와 같은 방법은, 나피온 이오노머의 물 흡수성이 낮아 캐소드측의 전기화학반응에 의한 생성수를 충분히 이용하지 못하므로 무가습 운전이 실질적으로 불가능하여 외부 가습기가 필요하고, 이로 인하여 부가비용이 발생하며, 부피를 많이 차지하게 된다는 문제점이 있다.

나아가, 핫프레싱에 의한 간접적인 전극 열처리가 충분하지 않으므로, 연료전지 운전중에 나피온 이오노머가 촉매와 같이 쓸려나오면서 장기운전에 불리하다는 문제점도 있다.

한편, Yoshitake 등은 캐소드 전극 촉매층을 3층의 구조로서 형성하되, 첫번째 전해질막과 직접 닿는 촉매 1층에 이온교환능이 높은 즉, EW가 낮은 이온전도성 고분자 이오노머를 포함시키고, 상기 촉매 1층과 인접한 두번째 촉매 2층에는 높은 산소 용해도를 가지는 이온전도성 고분자 이오노머를 포함시키며, 마지막으로 촉매 3층에는 용해성 플루오르폴리머(soluble fluoropolymer)를 포함시켜 제조하였다<M. Yoshitake, I. Terada, H. Shimoda, A. Watanabe, K. Yamada, K. Min and Y. Kunisa, "2002 Fuel Cell Seminar Abstracts". 826 (2002) 참조>.

이와 같은 방법으로 전극을 제조할 경우, 촉매의 1층과 2층에 EW가 높은 나피온 이오노머를 첨가시킴으로써 기존의 전극보다 전극과 전해질막의 계면 저항을 감소시킬 수 있고, 동시에 촉매층 내의 산소농도를 증가시켜 연료전지의 성능을 증가시킬 수 있다는 장점이 있다.

그러나, 상기 방법에 의하는 경우, 물 흡수성이 높아서 홍수 현상이 발생하므로, 성능이 급격히 낮아질 가능성이 있고, 더욱이, 핫프레싱에 의한 간접적인 전극 열처리가 충분하지 않으므로 연료전지 운전중에 나피온 이오노머가 촉매와 같이 쓸려나와서 장기운전에 불리하다는 문제점도 여전히 갖고 있다.

상술하면, 종래의 제조방법들에 있어서의 핫프레싱의 경우, 온도 120~140℃의 범위에서 100~200atm의 압력하에 30초~2분간 핫프레싱하여 MEA를 제조하였다. 이 MEA 제조 조건은 전극 촉매층 내의 나피온 이오노머의 상변화가 충분히 일어나지 않으므로, 촉매의 바인더와 전극과 전해질막 사이의 수소이온전달 역할을 하는 나피온 이오노머가 연료전지 운전 중에 습한 반응가스에 의해 재용해되어 쓸려나오게 되며, 이로 인해 촉매도 쓸려나오므로, 전극과 전해질막의 분리가 일어나 저항이 증가하면서 연료전지의 성능저하가 발생하고, 장기운전에도 불리하다는 문제점이 있다.

발명이 이루고자 하는 기술적 과제

따라서, 본 발명은 상기와 같은 문제점을 해결하기 위하여 안출된 것으로, 본 발명의 목적은, 상온 무가습 운전이 가능하고, 전극 촉매층의 홍수 현상을 방지할 수 있으며, 전극 촉매층 손실 방지로 인하여 장기운전특성이 증가하는, 연료전지용 다층 전극 및 그 제조 방법을 제공하는 것이다.

발명의 구성

상기와 같은 본 발명의 목적은, 기체확산층; 상기 기체확산층 상에 형성되는, 촉매 및 소정 EW를 갖는 나피온 이오노머의 용액을 포함하는 촉매 슬러리가 도포된 촉매층; 및 상기 촉매층상에 형성되는, 상기 나피온 이오노머의 소정 EW보다 낮은 EW를 갖는 나피온 이오노머의 용액의 코팅층;으로 구성되는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극에 의해 달성된다.

상기와 같은 본 발명의 목적은 또한, 소정 EW를 갖는 나피온 이오노머 용액 및 촉매를 포함하는 촉매슬러리를 제조하는 단계(S1); 상기 촉매슬러리를 기체확산층에 도포하는 단계(S2); 상기 기체확산층에 도포된 촉매슬러리를 1차로 건조하여 촉매층을 형성하는 단계(S3); 상기 건조된 촉매층 표면에 상기 촉매슬러리의 나피온 이오노머의 소정 EW보다 낮은 EW를 갖는 나피온 이오노머 용액을 도포하는 단계(S4); 상기 도포된 나피온 이오노머 용액을 2차로 건조하여 전극을 제조하는 단계(S5); 및 상기 건조된 전극을 열처리하는 단계(S6);를 포함하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 다층 전극의 제조 방법에 의해 달성된다.

이하, 본 발명에 따른 연료전지용 다층 전극 및 그 제조 방법을 상세하게 설명한다.

본 발명에서는, 전극을 제조할 때, 촉매층 내에는 하기의 나피온 이오노머의 EW와 대비하여 EW가 상대적으로 높은 나피온 이오노머를 넣어 흡수현상을 방지하고, 촉매층 표면에는 상기 나피온 이오노머의 EW와 대비하여 EW가 상대적으로 낮은 즉, 물 흡수성과 이온전도도가 높은 나피온 이오노머를 도포함으로써, 전극과 전해질막 계면저항을 줄이면서 전기화학 반응에 의한 생성수를 이용하여 연료전지의 성능을 높임에 따라 무가습 운전이 가능하도록 하며, 마지막으로 상기 제조된 전극과 전해질막을 접합하여 MEA를 제조하기 전에, 상기 전극을 열처리하여 촉매층 내부와 표면 나피온 이오노머의 기계적 물성을 나피온 상용 전해질막과 동일하게 함에 따라, 운전 중 촉매와 나피온 이오노머가 쓸려나가지 않도록 하여 장기 운전을 가능하게 할 수 있다.

도 1은 본 발명에 따른 연료전지용 다층 전극의 구성을 나타내는 개략도이다.

도 1에 도시된 바와 같이, 본 발명의 연료전지용 다층 전극은, 기체확산층(1)상에 Pt/C 촉매(2)가 도포되어 있고, 상기 촉매(2)간에는 소정 EW를 갖는 나피온 이오노머(3)가 도포되어 있고, 이와 같이 나피온 이오노머(3) 및 촉매(2)를 포함하는 촉매층의 표면상에는 상기 나피온 이오노머(3)의 소정 EW보다 낮은 EW를 갖는 나피온 이오노머(4)를 포함하는 코팅층이 형성된다.

이와 같이 상기 연료전지용 다층 전극은, 촉매층 내부 즉, 기체확산층상의 촉매층의 내부에, 하기 나피온 이오노머와 대비하여 EW가 상대적으로 높은 즉, 이온전도도와 물 흡수성이 낮은 퍼플루오리네이티드 설퍼닉 액시드 나피온 이오노머를 포함시키고, 이후 상기와 같이 형성된 촉매층 표면에, 상기 소정 EW보다 상대적으로 EW가 낮은 즉, 이온전도도와 물 흡수성이 높은 나피온 이오노머 용액의 코팅층이 형성된다.

그리고, 이와 같이 제조된 다층 전극은 120~170℃의 온도범위에서 0.5~24시간 열처리된다.

도 2는 본 발명에 따른 연료전지용 MEA의 구성을 나타내는 개략도이다.

도 2에 도시된 바와 같이, 상기와 같은 제조된 다층 전극과 상용 나피온 전해질막(5)을 접합하여 MEA를 완성한다.

상기 연료 전지용 다층 전극을 제조하기 위하여, 본 발명에서는 다음과 같은 제조 과정을 거친다.

우선, 소정 EW를 갖는 나피온 이오노머를 포함하는 촉매 슬러리를 제조한다(S1).

즉, 촉매 슬러리를 제조하기 위하여, 20~60wt% Pt/C (Vulcan XC-72R)를 사용한다. 본 발명에서 사용되는 나피온 이오노머의 총량(촉매층 내부 및 표면에 사용된 나피온 이오노머의 총량)은 상기 Pt/C 촉매 무게의 20~50%인데, 촉매 슬러리 제조시에는(즉, 촉매층 내부에 사용되는 경우이다) 상기 나피온 이오노머 총량의 1/12~4/12 량의, 5wt% 이하, EW 1,000~1,300 나피온 이오노머를 IPA 용매 또는 EtOH 용매와 함께 20분 내지 24시간 교반하도록 한다.

나피온 이오노머의 양을 촉매층 내부에서 상기와 같이 나피온 이오노머 총량의 1/12~4/12 량으로 사용하여야 성능이 가장 우수한데, 나피온 이오노머의 양을 촉매층 내부에서 나피온 이오노머 총량의 1/12 미만으로 사용하는 경우에는 삼상계면 형성이 적고, 나피온 이오노머 총량의 4/12를 초과하여 사용하는 경우에는 촉매를 뒤덮어 버리게 된다.

이때, 20~40wt% Pt/C (Vulcan XC-72R)와, 상기 나피온 이오노머 총량의 1/12~2/12 량의, 5wt% 이하, EW 1,100~1,200 나피온 이오노머를 IPA 용매 또는 EtOH 용매와 함께 20분 내지 24시간 교반하여 제조하도록 하는 것이 바람직하다.

다음으로, 상기 촉매슬러리를 기체확산층에 도포한다(S2).

즉, 상기와 같이 제조된 촉매슬러리를, 기체확산층인 20~60wt% PTFE 탄소종이 또는 탄소천에 0.04~1.2mg-Pt/C/cm²의 로딩(loading)량으로 스프레이법 또는 테이프 캐스팅법으로 도포하는데, 이때, 상기 기체확산층으로 20~40wt% PTFE 탄소종이를 사용하는 것이 바람직하고, 상기 로딩량은 0.4~0.7mg-Pt/C/cm²이 되도록 하는 것이 바람직하다.

다음으로, 상기 기체 확산층에 도포된 촉매슬러리를 1차로 건조한다(S3).

즉, 상기와 같이 촉매를 도포한 후, 60~80℃의 온도의 오븐에서 30분~24시간 건조한다. 이때, 60~80℃의 온도의 오븐에서 1~2시간 건조시키는 것이 바람직하다.

다음으로, 상기 건조된 촉매층 표면에 상기 촉매 슬러리의 나피온 이오노머의 소정 EW보다 낮은 EW를 갖는 나피온 이오노머의 용액을 도포한다(S4).

즉, 상기 나피온 이오노머 총량(즉, Pt/C 촉매 무게의 20~50%)중 상기 촉매 슬러리의 나피온 이오노머의 양[상기 나피온 이오노머 총량의 1/12~4/12(바람직하게는, 1/12~2/12)]을 제외한 나머지 양의, 5wt% 이하, EW 400~1,000 나피온 이오노머(또는, EW 1,100~1,200 나피온 이오노머를 사용하는데, 이때, 상기 촉매 슬러리의 나피온 이오노머의 EW가 1,100~1,200인 경우에는 그 보다 낮은 EW를 선택한다)를 IPA 용매 또는 EtOH 용매와 함께 20분~24시간 교반하도록 하여 나피온 이오노머의 용액을 제조한다.

이와 같이 상기 S1 단계와 S4 단계에서의 사용되는 나피온 이오노머는 촉매층 내부와 표면에서 그 EW가 상이하며, 촉매층 표면의 경우 EW가 상대적으로 낮다. 앞서 설명한 바와 같이, 사용되는 나피온 이오노머의 총량은 Pt/C 촉매 무게의 20~50%이며, 촉매층 내부에는 상기 나피온 이오노머 총량의 1/12~4/12 량(바람직하게는, 1/12~2/12 량)이 존재하도록 하고, 촉매층 표면에는 상기 나피온 이오노머의 총량중 상기 촉매 슬러리의 나피온 이오노머의 양을 제외한 나머지 양이 존재하도록 한다.

다음으로, 상기 나피온 이오노머 용액이 도포된 것을 2차로 건조한다(S5).

즉, 상기 나피온 이오노머 용액을 도포한 후, 60~80℃의 온도의 오븐에서 30분~24시간 건조하도록 하는데, 이때, 60~80℃의 온도의 오븐에서 1~2시간 건조하는 것이 바람직하다.

다음으로, 이와 같이 제조된 전극을 진공오븐에서 열처리한다(S6).

즉, 진공오븐에서 120~170℃ 범위로 0.5~24 시간 열처리하여 숙성과정을 거치는데, 숙성과정동안 상변화(phase inversion)가 일어나 나피온의 기계적 강도가 상용 나피온 전해질막과 동일하게 된다.

이때, 진공오븐에서 150~170℃ 범위로 6~18시간 열처리하여 숙성과정을 거치는 것이 더욱 바람직하다.

이와 같이, 유리전이온도 이상 (120~170℃)에서, 0.5~24 시간으로 진공오븐에서 열처리할 경우, 전극 촉매층의 나피온 이오노머와 나피온 이오노머 용액으로 제조된 SCM(solution cast membrane)막에 상변화(phase inversion)가 일어나게 되고, 기계적 물성이 상용막과 같이 증가하면서, 서로 강하게 결합하므로 연료전지 운전중에 나피온 이오노머와 촉매의 손실이 발생하지 않게 되고, 따라서 연료전지 운전 중에 계면저항이 MEA 제조 초기와 거의 같은 수준으로 유지될 수 있어 장기 운전에도 유리하다.

또한, 나피온 이오노머의 경우, 상기와 같이 유리전이온도 이상에서 충분한 시간동안 열처리과정을 거치면, C-F 로 이루어진 주쇄가 서로 퓨징(fusing)되고, 술폰기(-SO₃H)의 로테이션(rotation)이 일어나 외부에서 내부로 배향되면서 서로 이온결합을 하기 때문에 기계적 물성이 증가한다.

그리고, 나피온 상용막을 이용하는 MEA의 경우에는, 상기와 같이 열처리과정을 거쳐 제조되므로 그 기계적 물성이 증가하여 수명이 1,000~100,000 시간에 이르게 된다.

이하, 본 발명의 바람직한 실시예를 비교예와 대비하여 설명함으로써 본 발명을 더욱 상세하게 설명한다. 그러나 본 발명이 하기 실시예에 한정되는 것은 아니며 첨부된 특허청구범위내에서 다양한 형태의 실시예들이 구현될 수 있고, 단지 하기 실시예는 본 발명의 개시가 완전하도록 함과 동시에 당업계에서 통상의 지식을 가진 자에게 발명의 실시를 용이하게 하고자 하는 것이다.

<실시예의 MEA 제조>

전극에서 촉매 물질로는 카본 블랙 담체[벌칸(Vulcan) XC-72R, 캐봇(Cabot)]에 20wt% Pt가 담지된 Pt/C 분말(일렉트로켄 또는 E-텍크)을 사용하였고, 촉매 지지체로는 발수성을 주기 위해 PTFE(Polytetrafluorethylene)를 20wt% 함유한 탄소종이(TGPH-060)를 사용하였다.

전극 제조용 잉크는 Pt/C와, 사용된 나피온 이오노머 총량이 상기 Pt/C 촉매 무게의 33%일 경우 상기 나피온 이오노머 총량의 4/12 량의, 5wt%인, 나피온 이오노머 (EW=1,100)를 이소프로필 알코올(IPA)에 분산시켜 제조하였으며, 균일한 분산을 위해 초음파 처리를 하였다.

이렇게 하여 제조된 촉매 잉크를 에어 브러쉬 건을 이용하여 탄소 종이 위에 코팅을 하였고, 그 위에 IPA로 희석시킨, 상기 나피온 이오노머 총량중 상기 EW 1,100인 나피온 이오노머의 양을 제외한 나머지 양의, 5wt%인, 나피온 이오노머 (EW=1,000)를 추가로 촉매 표면위에 도포하여 산화극과 환원극의 촉매층을 형성시켰으며, 촉매의 Pt 적재량은 산화극 0.4mg/cm², 환원극 0.7mg/cm²으로 하였다.

제조된 산화극, 환원극 전극을 미리 전처리된 나피온 115 고분자 전해질막 (EW=1,100) 양쪽에 놓은 후 가열 압착하여 MEA를 제조하였다. 이 때, 온도는 140℃, 압력은 200atm, 접합시간은 90초로 하였다.

<비교예의 MEA 제조>

전극에서 촉매 물질로는 카본 블랙 담체[벌칸(Vulcan) XC-72R, 캐봇(Cabot)]에 20wt% Pt가 담지된 Pt/C 분말(일렉트로켄 또는 E-텍크)을 사용하였고, 촉매 지지체로는 발수성을 주기 위해 PTFE(Polytetrafluorethylene)를 20wt% 함유한 탄소종이(TGPH-060)를 사용하였다.

전극 제조용 잉크는 Pt/C와 사용된 총 나피온 이오노머 총량이 상기 Pt/C 촉매 무게의 33%일 경우 상기 나피온 이오노머 총량의 4/12 량의, 5wt%인, 나피온 이오노머 (EW=1,100)를 이소프로필알코올(IPA)에 분산시켜 제조하였으며, 균일한 분산을 위해 초음파 처리를 하였다.

이렇게 하여 제조된 촉매 잉크를 에어 브러쉬 건을 이용하여 탄소 종이 위에 코팅을 하였고, 그 위에 IPA로 희석시킨 상기 나피온 이오노머 총량중 상기 EW 1,100인 나피온 이오노머의 양을 제외한 나머지 양의, 5wt%인, 나피온 이오노머 (EW=1,100)를 추가로 촉매 표면위에 도포하여 산화극과 환원극의 촉매층을 형성시켰으며, 촉매의 Pt 적재량은 산화극 0.4mg/cm², 환원극 0.7mg/cm²으로 하였다.

제조된 산화극, 환원극 전극을 미리 전처리된 나피온 115 고분자 전해질막 (EW=1,100) 양쪽에 놓은 후 가열 압착하여 MEA를 제조하였다. 이 때 온도는 140℃, 압력은 200atm, 접합시간은 90초로 하였다.

<실험예1 : 80℃ 표준 가습 운전 조건>

상기 제조된 실시예 및 비교예의 MEA의 성능을 살펴보기 위하여, 단전지 실험을 수행하였다. 본 실험예1에서는 80℃ 표준 가습 운전 조건에서 성능을 측정하고 이를 비교하였다.

도 3은 본 발명의 실험예1에 따라 80℃ 표준 가습 운전 조건에서 비교예 및 실시예의 성능을 대비하여 나타내는 그래프로서, ■는 실시예의 MEA를 이용한 경우를 표시하고, ▲는 비교예의 MEA를 이용한 경우를 표시한다.

도 3에 도시된 바와 같이, 실시예의 MEA의 경우가 같은 전압에서 전류 밀도가 증가하여 성능이 우수함을 알 수 있었다.

<실험예2 : 상온 무가습 운전 조건>

한편, 본 실험예2에서는 상온 무가습 운전 조건에서 성능을 측정하고 이를 비교하였다.

도 4는 본 발명의 실험예2에 따라 상온 무가습 운전 조건에서 비교예 및 실시예의 성능을 대비하여 나타내는 그래프로써, ■는 비교예의 MEA를 이용한 경우를 표시하고, ▲는 실시예의 MEA를 이용한 경우를 표시한다.

도 4에 도시된 바와 같이, 실시예의 MEA의 경우가 현저히 성능이 우수함을 알 수 있었다.

발명의 효과

본 발명의 연료전지용 다층 전극 및 그 제조 방법에 따르면, 상온 무가습 운전이 가능하고, 전극 촉매층의 홍수 현상을 방지할 수 있으며, 전극 촉매층 손실 방지로 인하여 장기운전특성이 증가하는 효과를 달성한다.

비록 본 발명이 상기 언급된 바람직한 실시예와 관련하여 설명되어졌지만, 발명의 요지와 범위로부터 벗어남이 없이 다양한 수정이나 변형을 하는 것이 가능하다. 따라서 첨부된 특허청구의 범위는 본 발명의 요지에서 속하는 이러한 수정이나 변형을 포함할 것이다.

도면의 간단한 설명

도 1은 본 발명에 따른 연료전지용 다층 전극의 구성을 나타내는 개략도이다.

도 2는 본 발명에 따른 연료전지용 MEA의 구성을 나타내는 개략도이다.

도 3은 본 발명의 실험예1에 따라 80℃ 표준 가습 운전 조건에서의 비교예 및 실시예의 성능을 나타내는 그래프로서, ■는 실시예의 MEA의 경우를 표시하고, ▲는 비교예의 MEA의 경우를 표시한다.

도 4는 본 발명의 실험예2에 따라 상온, 무가습 운전 조건에서의 비교예 및 실시예의 성능을 나타내는 그래프로서, ■는 비교예의 MEA의 경우를 표시하고, ▲는 실시예의 MEA의 경우를 표시한다.

주요 도면 부호의 간단한 설명

1 : 기체확산층

2 : Pt/C 촉매

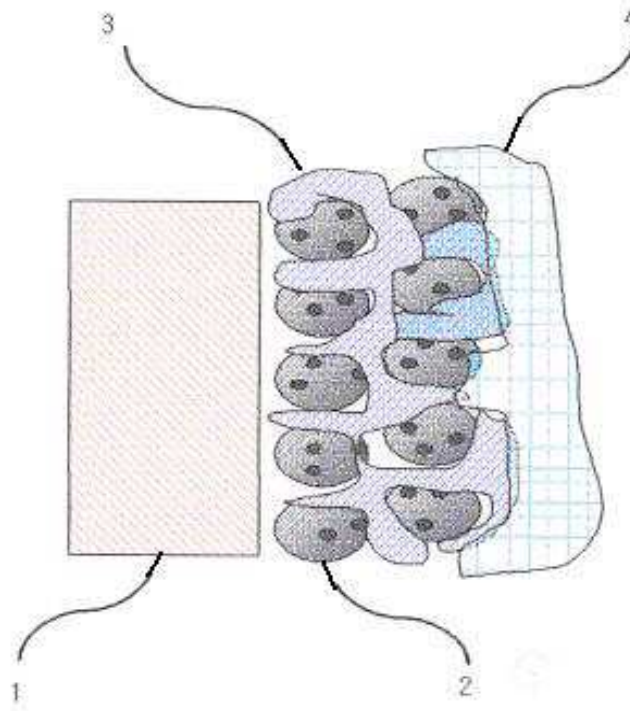
3 : 소정 EW를 갖는 나피온 이오노머

4 : 3의 나피온 이오노머의 소정 EW보다 낮은 EW를 갖는 나피온 이오노머

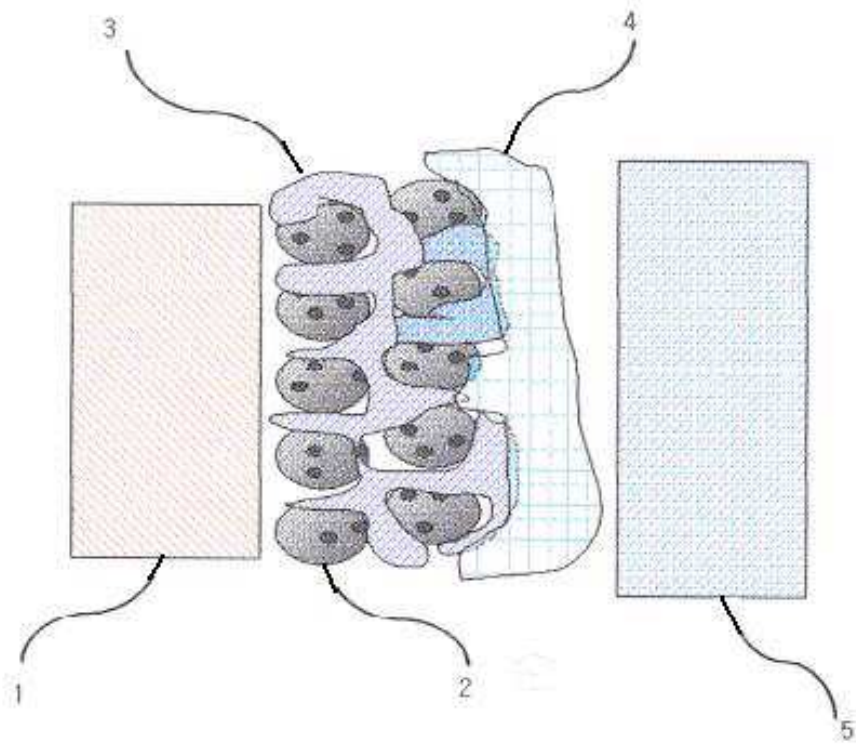
5 : 상용 전해질 막

도면

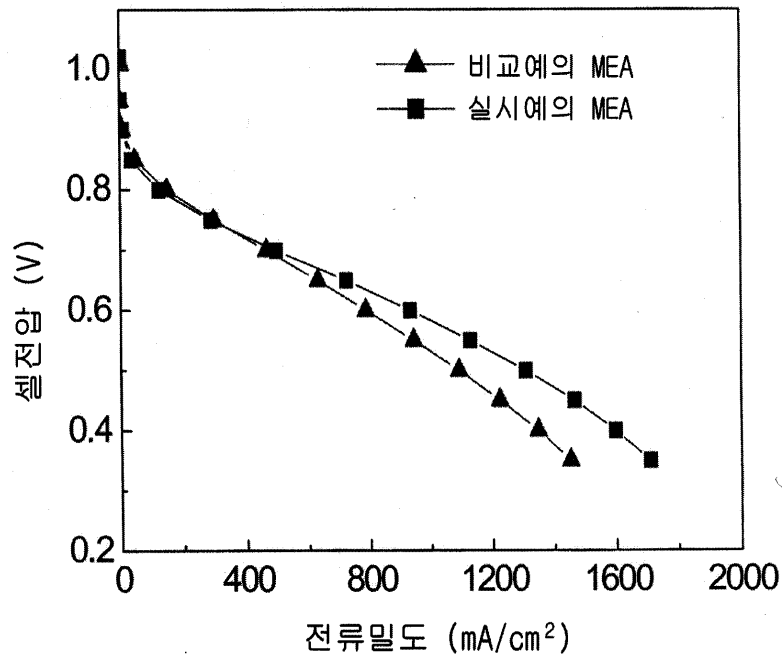
도면1



도면2



도면3



도면4

