



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2014-0140422
(43) 공개일자 2014년12월09일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01M 4/86 (2006.01) H01M 8/02 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2013-0061266
(22) 출원일자 2013년05월29일
심사청구일자 2013년05월29일

(71) 출원인
광주과학기술원
광주광역시 북구 첨단과기로 123 (오룡동)
(72) 발명자
이재영
광주광역시 북구 첨단과기로 123(오룡동) 광주과
과학기술원 환경공학부
주형국
광주광역시 북구 첨단과기로 123(오룡동) 광주과
과학기술원 환경공학부
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
특허법인충현

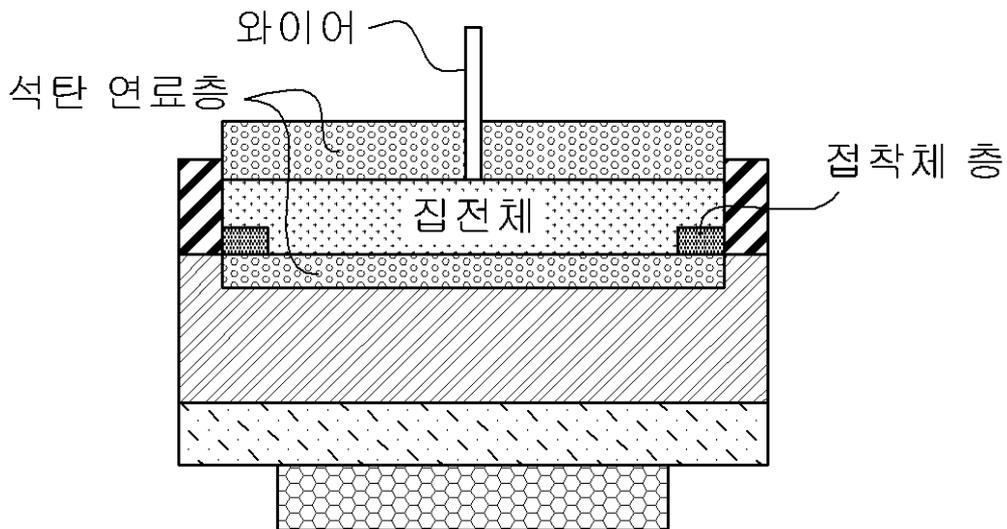
전체 청구항 수 : 총 13 항

(54) 발명의 명칭 직접탄소 연료전지용 막-전극 접합체, 이를 포함하는 직접탄소 연료전지, 및 이의 제조방법

(57) 요약

본 발명은 석탄 연료가 전기화학적으로 산화 반응을 일으키고 이때 발생하는 전자가 양 전극간의 전위차에 의해 서 전기를 발생할 수 있도록 구성된 석탄 직접탄소 연료전지에 대한 것으로, 구체적으로는 저등급 석탄 연료 가 동을 위한 막-전극 접합체, 이를 포함하는 직접탄소 연료전지 및 이의 제조방법에 관한 것이다.

대표도 - 도3a



(72) 발명자
엄지영
 광주광역시 북구 첨단과기로 123(오룡동) 광주과학기술원 환경공학부

이재광
 광주광역시 북구 첨단과기로 123(오룡동) 광주과학기술원 환경공학부

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	20113020030010
부처명	지식경제부
연구관리전문기관	한국에너지기술평가원
연구사업명	신재생에너지기술개발사업-에너지미래기술
연구과제명	직접탄소 연료전지 원천 기술 개발 (Development of core technology for direct carbon fuel cell)
기 여 율	1/1
주관기관	한국에너지기술연구원
연구기간	2011.09.01 ~ 2015.08.31

특허청구의 범위

청구항 1

- (a) 공기극,
- (b) 상기 공기극과 인접하도록 상기 공기극 위에 위치한 전해질,
- (c) 상기 전해질과 인접하도록 상기 전해질 상에 위치한 연료극,
- (d) 상기 연료극 위에 위치한 집전체,
- (e) 상기 집전체의 상부면과 하부면을 덮고 있고 상기 집전체의 내부를 채우고 있는 석탄 연료층,
- (f) 상기 집전체와 연결되고 상기 집전체층의 상부면을 덮고 있는 석탄 연료층의 상부로 뚫고 나온 와이어를 포함하는 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 석탄 연료층은 젤 타입의 석탄 연료층인 것을 특징으로 하는 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체.

청구항 3

제2항에 있어서, 상기 석탄 연료층은 상기 집전체를 상기 연료극 위에 올려놓고, 상기 젤 타입의 석탄 연료층을 상기 집전체 위에 위치시켜, 상기 젤 타입의 석탄 연료층이 상기 집전체의 내부로 침투하여 상기 집전체의 하부면까지 관통함으로써, 상기 젤 타입의 석탄 연료층이 상기 연료극과 물리적으로 접촉할 수 있도록 함으로써 형성된 것을 특징으로 하는 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체.

청구항 4

제3항에 있어서, 상기 직접탄소 연료전지는 상기 연료극 및 상기 집전체 사이에 위치한 (g) 접착제 층을 추가로 포함하고,

상기 접착제 층은 상기 집전체의 하부면 전체 중 일부에만 형성되어 있고,

상기 접착제 층이 형성되지 않은 상기 메쉬의 하부면과 상기 연료극 사이에는 상기 석탄 연료층이 존재하는 것을 특징으로 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체.

청구항 5

제4항에 있어서, 상기 접착제 층은 상기 집전체의 가장자리에만 형성되어 있고,

상기 접착제 층이 형성되지 않은 상기 메쉬의 하부면 중심 부위와 상기 연료극 사이에는 상기 석탄 연료층이 존재하는 것을 특징으로 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체.

청구항 6

제5항에 있어서, 상기 집전체는 Pt 메쉬이고, 상기 와이어는 Pt 와이어이고, 상기 접착제 층은 Ag 또는 Pt 접착제 층이며, 상기 젤 타입의 석탄 연료층은 에틸렌글리콜 1 mL 기준으로 석탄 연료 1.5-3.5 g이 포함된 젤 타입의 석탄 연료층인 것을 특징으로 하는 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체.

청구항 7

제1항 내지 제6항 중 어느 한 항에 따른 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체를 포함하는 것을 특징으로 하는 직접탄소 연료전지.

청구항 8

(A) 와이어를 집전체와 연결시키는 단계;

(B) 공기극/전해질/연료극 구조체 중 상기 연료극 위에 상기 와이어와 연결된 집전체를 위치시키는 단계;

(C) 상기 집전체 위에 석탄 연료층을 올려놓고, 상기 석탄 연료층이 상기 집전체의 내부로 침투하여 상기 집전체의 하부면까지 관통함으로써, 상기 석탄 연료층을 상기 연료극과 물리적으로 접촉시키는 단계를 포함하는 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체 제조방법.

청구항 9

제8항에 있어서, 상기 (C) 단계에서 상기 집전체 위에 석탄 연료층을 올려놓는 공정은 (C1) 젤 타입의 석탄 연료층 도포하거나, (C2) 페이스트 타입의 석탄 연료층을 붓으로 도포하거나, (C3) 스프레이 액 타입의 석탄 연료층을 스프레이 방식으로 도포함으로써 수행되는 것을 특징으로 하는 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체 제조방법.

청구항 10

제9항에 있어서, 상기 (B) 단계는 상기 연료극 및 상기 집전체 사이에 접착제 층을 형성시켜 상기 연료극과 상기 집전체를 접착시킴으로써 수행되고,

상기 접착제 층은 상기 집전체의 하부면 전체 중 일부에만 형성되어 있으며,

상기 접착제 층이 형성되지 않은 상기 메쉬의 하부면과 상기 연료극 사이에는 상기 석탄 연료층이 존재하는 것을 특징으로 하는 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체 제조방법.

청구항 11

제10항에 있어서, 상기 상기 접착제 층은 상기 집전체의 가장자리에만 형성되어 있고,

상기 접착제 층이 형성되지 않은 상기 메쉬의 하부면 중심 부위와 상기 연료극 사이에는 상기 석탄 연료층이 존재하는 것을 특징으로 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체의 제조방법.

청구항 12

제11항에 있어서, 상기 집전체는 Pt 메쉬이고, 상기 와이어는 Pt 와이어이고, 상기 접착제 층은 Ag 또는 Pt 접착제 층이며, 상기 젤 타입의 석탄 연료층은 에틸렌글리콜 1 mL 기준으로 석탄 연료 1.5-3.5 g이 포함된 젤 타입의 석탄 연료층인 것을 특징으로 하는 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체의 제조방법.

청구항 13

제8항 내지 제12항 중 어느 한 항에 따른 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체 제조방법을 포함하는 것을 특징으로 하는 직접탄소 연료전지의 제조방법.

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 직접탄소 연료전지용 막-전극 집합체, 이를 포함하는 직접탄소 연료전지, 및 이의 제조방법에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 탄소는 고체상이어서 수소와 같은 기상보다 에너지 밀도가 크다는 장점이 있지만, 다공성 촉매와 접촉하는 삼상 계면에서의 고체 탄소와 고체 연료극 촉매 사이의 반응이 어렵다는 단점이 있다. 석탄을 연료로 하는 직접탄소 연료전지(direct carbon fuel cell; DCFC)에 대한 문헌을 살펴보면, 시스템 구성 및 전해질의 종류 등에 따라서 연료전지를 구동하는 방법이 다르다. 이는 연료전지에 석탄을 연료로 사용하기 위한 연구에서, 낮은 삼상 계면에서의 반응성을 극복하려는 시도가 이루어지기 때문이다.

[0003] 고상 연료와 고상 연료극과의 접촉 문제를 해결하기 위한 시도로는 유동층 반응기를 이용하여 석탄을 가스화하거나, 전해질을 이용하여 액상인 용융 탄산염과 탄소와의 접촉을 좋게 하는 방법 등이 보고되어 있다. 그러나, 위와 같은 방법에 의해서는 직접 전기화학적 반응의 효율이 80%를 상회하는 열역학적 장점을 잃게 될 수밖에 없는데, 탄소가 가지는 에너지를 직접 전기화학적으로 이용하기보다는, 역 부다 반응(Reverse Boudouard

reaction; $C + CO_2 \rightarrow CO$)과 같은 화학적 반응에 생성된 CO 가스를 연료로 이용하거나, 연료 주입 시 내부 화학적 개질 반응을 촉진시키기 위해서 수증기 혹은 소량의 산소를 주입하여 수증기 개질(steam reforming) 혹은 부분 산화(partical oxidation)를 통해서 구동하기 때문이다.

[0004] DCFC 연구에 있어서 시스템적으로 매우 중요한 요소는 막-전극 접합체(MEA)와 집전체 사이의 접촉 저항(ohmic resistance)을 최소화하는 것과 이를 위한 고체 탄소 연료의 충전 방법이다. 연료극의 경우, 고체 탄소 연료와 연료극 촉매 반응 사이트 사이에 접촉이 잘 이루어져야 전기화학적 반응이 가능하기 때문이다. 그러나, 이를 위해서는 기존의 고체 산화물 연료전지(solid oxide fuel cell; SOFC)에 적용되는 집전 방법을 동일하게 직접탄소 연료전지에 이용한다면 충분한 반응 사이트를 활용할 수 없게 되는 문제가 있다. DCFC의 고체 탄소 연료의 직접 전기화학적 산화를 위한 연구가 진행되고 있지만, 연료의 충전 방법을 비롯하여 MEA와 집전체의 체결 방법에 대한 연구 성과가 크지 않은 상황이다.

[0005] 특히, Desclaux 등은 도 1a 및 도 1b에 개략적으로 나타낸 바와 같은 구조의 석탄 직접탄소 연료전지를 개시하고 있는데[International Journal Hydrogen Energy 36 (2011) 10278-10281], 공기극/전해질/연료극 위에 고체 석탄을 위치시키고, Pt 메쉬와 Pt 와이어를 구비한 구조이다. 이와 같이 Pt 와이어가 고체 석탄과 접촉해 있고, 접착제와 연결이 안 되어 있을 뿐만 아니라 연료극과는 더욱더 연결되어 있지 않아, 계면에서의 전자 전달 저항이 큰 문제가 있다.

[0006] 또한, Chen Li 등은 도 2a에 개략적으로 나타낸 바와 같은 구조의 석탄 직접탄소 연료전지를 개시하고 있는데 [Journal of Power Sources 196 (2011) 4588-4593], 공기극/전해질/연료극 위에 (Ag 또는 Pt 접착제)/(Pt 메쉬 + Pt 와이어)/고체 석탄층이 구비된 구조이다. 이와 같이 Pt 와이어가 석탄을 뚫고 Pt 메쉬와 연결되어 있고, Pt 메쉬는 Ag 접착제에 의해서 연료극과 긴밀히 연결되어 있는 구조이기는 하지만, 석탄 연료가 Pt 메쉬 및 Ag 접착제 층을 뚫고 연료극까지 전달되어야 하므로, 계면에서의 연료 전달 저항이 큰 문제가 있다.

선행기술문헌

비특허문헌

- [0007] (비특허문헌 0001) 1. International Journal Hydrogen Energy 36 (2011) 10278-10281
- (비특허문헌 0002) 2. Journal of Power Sources 196 (2011) 4588-4593

발명의 내용

해결하려는 과제

[0008] 따라서, 본 발명은 위와 같은 기존 기술의 문제를 해결함으로써, 계면에서의 전자 전달 저항 및 연료 전달 저항을 최소화하기 위한 고체 탄소 연료의 충전 방법, 및 그 외 직접탄소 연료전지의 최종 성능을 향상시킬 수 있는 여러 구현예를 제공하고자 한다.

과제의 해결 수단

[0009] 본 발명의 대표적인 일 측면에 따르면, (a) 공기극, (b) 상기 공기극과 인접하도록 상기 공기극 위에 위치한 전해질, (c) 상기 전해질과 인접하도록 상기 전해질 상에 위치한 연료극, (d) 상기 연료극 위에 위치한 집전체, (e) 상기 집전체의 상부면과 하부면을 덮고 있고 상기 집전체의 내부를 채우고 있는 석탄 연료층, (f) 상기 집전체와 연결되고 상기 집전체층의 상부면을 덮고 있는 석탄 연료층의 상부로 뚫고 나온 와이어를 포함하는 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 접합체가 개시된다.

[0010] 본 발명의 대표적인 다른 측면에 따르면, (A) 와이어를 집전체와 연결시키는 단계; (B) 공기극/전해질/연료극 구조체 중 상기 연료극 위에 상기 와이어와 연결된 집전체를 위치시키는 단계; (C) 상기 집전체 위에 석탄 연료층을 올려놓고, 상기 석탄 연료층이 상기 집전체의 내부로 침투하여 상기 집전체의 하부면까지 관통함으로써, 상기 석탄 연료층을 상기 연료극과 물리적으로 접촉시키는 단계를 포함하는 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 접합체 제조방법이 개시된다.

[0011] 본 발명의 대표적인 또 다른 측면에 따르면, 본 발명의 여러 구현예에 따른 전극-전해질 접합체를 포함하는 직

접탄소 연료전지 또는 이의 제조방법이 개시된다.

발명의 효과

- [0012] 본 발명의 여러 구현예에 따르면, 계면에서의 전자 전달 저항 및 연료 전달 저항을 최소화할 수 있을 뿐만 아니라, 그 외 여러 구현예에 의해 직접탄소 연료전지의 최종 성능이 향상되는 효과를 달성할 수 있다.
- [0013] 구체적으로, 본 발명에서는 버튼형 전지를 이용한 직접탄소 연료전지 시스템을 개발하고, 집전체와 전극 결합 시 발생하는 접촉 저항(ohmic resistance)을 낮추고, 고체 석탄 연료와 다공성 촉매와의 접촉성을 높여 성능을 증가시키는 효과를 달성할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0014] 도 1a, 도 1b, 도 2a는 종래 기술에 따른 직접탄소 연료전지용 막-전극 집합체에 대한 개략도이다. 도 3a 및 도 3b는 본 발명의 일 구현예에 따른 직접탄소 연료전지용 막-전극 집합체에 대한 개략도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0015] 이하에서, 본 발명의 여러 측면 및 다양한 구현예에 대해 더욱 구체적으로 살펴보도록 한다.
- [0016] 본 발명의 일 측면은, 도 3a 및 도 3b에 제시된 바와 같이, (a) 공기극, (b) 상기 공기극과 인접하도록 상기 공기극 위에 위치한 전해질, (c) 상기 전해질과 인접하도록 상기 전해질 상에 위치한 연료극, (d) 상기 연료극 위에 위치한 집전체, (e) 상기 집전체의 상부면과 하부면을 덮고 있고 상기 집전체의 내부를 채우고 있는 석탄 연료층, (f) 상기 집전체와 연결되고 상기 집전체층의 상부면을 덮고 있는 석탄 연료층의 상부로 뚫고 나온 와이어를 포함하는 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체에 관한 것이다.
- [0017] 일 구현예에 따르면, 상기 석탄 연료층은 젤 타입의 석탄 연료층이다.
- [0018] 다른 구현예에 따르면, 상기 석탄 연료층은 상기 집전체를 상기 연료극 위에 올려놓고, 상기 젤 타입의 석탄 연료층을 상기 집전체 위에 위치시켜, 상기 젤 타입의 석탄 연료층이 상기 집전체의 내부로 침투하여 상기 집전체의 하부면까지 관통함으로써, 상기 젤 타입의 석탄 연료층이 상기 연료극과 물리적으로 접촉할 수 있도록 함으로써 형성된다.
- [0019] 또 다른 구현예에 따르면, 상기 직접탄소 연료전지는 상기 연료극 및 상기 집전체 사이에 위치한 (g) 접촉제 층을 추가로 포함하고, 상기 접촉제 층은 상기 집전체의 하부면 전체 중 일부에만 형성되어 있으며, 상기 접촉제 층이 형성되지 않은 상기 메쉬의 하부면과 상기 연료극 사이에는 상기 석탄 연료층이 존재한다.
- [0020] 또 다른 구현예에 따르면, 상기 접촉제 층은 상기 집전체의 가장자리에만 형성되어 있고, 상기 접촉제 층이 형성되지 않은 상기 메쉬의 하부면 중심 부위와 상기 연료극 사이에는 상기 석탄 연료층이 존재한다.
- [0021] 또 다른 구현예에 따르면, 상기 집전체는 Pt 메쉬이고, 상기 와이어는 Pt 와이어이고, 상기 접촉제 층은 Ag 또는 Pt 접촉제 층이며, 상기 젤 타입의 석탄 연료층은 에틸렌글리콜 1 mL 기준으로 석탄 연료 1.5-3.5 g이 포함된 젤 타입의 석탄 연료층이다.
- [0022] 본 발명의 다른 측면은 본 발명의 여러 구현예에 따른 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체를 포함하는 직접탄소 연료전지에 관한 것이다.
- [0023] 본 발명의 또 다른 측면은 (A) 와이어를 집전체와 연결시키는 단계; (B) 공기극/전해질/연료극 구조체 중 상기 연료극 위에 상기 와이어와 연결된 집전체를 위치시키는 단계; (C) 상기 집전체 위에 석탄 연료층을 올려놓고, 상기 석탄 연료층이 상기 집전체의 내부로 침투하여 상기 집전체의 하부면까지 관통함으로써, 상기 석탄 연료층을 상기 연료극과 물리적으로 접촉시키는 단계를 포함하는 직접탄소 연료전지용 전극-전해질 집합체 제조방법에 관한 것이다.
- [0024] 일 구현예에 따르면, 상기 (C) 단계에서 상기 집전체 위에 석탄 연료층을 올려놓는 공정은 (C1) 젤 타입의 석탄 연료층 도포하거나, (C2) 페이스트 타입의 석탄 연료층을 붓으로 도포하거나, (C3) 스프레이 액 타입의 석탄 연료층을 스프레이 방식으로 도포함으로써 수행될 수 있다.
- [0025] 이와 같이, 석탄 연료의 유동성을 향상시켜 석탄 연료층을 형성함으로써, 직접탄소 연료전지의 작동 온도인 700 ℃ 이상으로 승온 시, 승온 과정에 첨가된 에틸렌글리콜과 같은 용기 용제에 의해 유동성이 더욱 높아져 망 형태

의 집전체의 투과뿐만 아니라 기공 구조를 가지는 연료극의 반응 사이트와 물리적 접촉성이 좋아짐을 확인하였다.

- [0026] 특히, 젤 타입의 석탄 연료층을 도포하는 것이 바람직하고, 그 중에서도 에틸렌글리콜 1 mL 기준으로 석탄 연료 1.5-3.5 g이 포함된 젤 타입의 석탄 연료층을 도포하는 것이 더욱 바람직한데, 이와 같은 범위 내의 젤 타입 석탄 연료층을 사용하는 경우, 집전체를 침투하여 상기 집전체 상하면 및 내부에 고르게 상기 석탄 연료층이 분포될 수 있어, 최종 연료전지 성능 향상에 크게 유리함을 확인하였다.
- [0027] 다른 구현예에 따르면, 상기 (B) 단계는 상기 연료극 및 상기 집전체 사이에 접착제 층을 형성시켜 상기 연료극과 상기 집전체를 접촉시킴으로써 수행되고, 상기 접착제 층은 상기 집전체의 하부면 전체 중 일부에만 형성되어 있으며, 상기 접착제 층이 형성되지 않은 상기 메쉬의 하부면과 상기 연료극 사이에는 상기 석탄 연료층이 존재한다.
- [0028] 또 다른 구현예에 따르면, 상기 상기 접착제 층은 상기 집전체의 가장자리에만 형성되어 있고, 상기 접착제 층이 형성되지 않은 상기 메쉬의 하부면 중심 부위와 상기 연료극 사이에는 상기 석탄 연료층이 존재한다. 이와 같이 접착제 층을 상기 집전체의 가장자리에만 형성시킴으로써, 연료극과 집전체가 직접 닿기 때문에 계면 저항이 낮고, 접착제 층에 의한 연료극의 반응 사이트 차단을 최소화할 수 있어, 최종 연료전지 성능을 크게 향상시킬 수 있다.
- [0029] 또 다른 구현예에 따르면, 상기 집전체는 Pt 메쉬이고, 상기 와이어는 Pt 와이어이고, 상기 접착제 층은 Ag 또는 Pt 접착제 층이며, 상기 젤 타입의 석탄 연료층은 에틸렌글리콜 1 mL 기준으로 석탄 연료 1.5-3.5 g이 포함된 젤 타입의 석탄 연료층이다.
- [0030] 본 발명의 또 다른 측면은 본 발명의 여러 구현예에 따른 전극-전해질 집합체 제조방법을 포함하는 직접탄소 연료전지의 제조방법에 관한 것이다.
- [0031] 이하에서, 본 발명의 여러 측면 및 다양한 구현예 중 일부 특징 및 원리에 대해 더욱 구체적으로 살펴보도록 한다.
- [0032] 본 발명에서는, 버튼형 전지를 이용한 직접탄소 연료전지 시스템을 개발하고, 집전체와 전극 결합 시 발생하는 접촉 저항(ohmic resistance)을 낮추고, 고체 석탄 연료와 다공성 촉매와의 접촉성을 높여 성능을 증가시키고자 한다.
- [0033] 시스템 구성으로는 반응기 상하에 압축 스프링과 상하부에는 수동 나사를 장착하였다. 하부의 수동 나사를 이용하여 공기극의 집전체 봉이 직접 막-전극 집합체(MEA)의 공기극 촉매 부분에 압력이 가해지며 직접 물리적으로 접지됨으로써 접촉 저항을 최소화하였다. 이를 통해서 공기극 부분에는 은 또는 금 접착제와 같은 이종의 물질의 사용을 배제할 수 있었다.
- [0034] 한편, 연료극 MEA 부분은 고체 탄소연료를 담지해야 하기 때문에 공기극과는 그 방법을 달리 하였다. 우선, 1.2 cm × 1.2 cm 크기의 Pt 메쉬(52 메쉬, 0.1 mm, 99.9%)와 길이 5 cm의 Pt 와이어(0.5 mm 99.99%)를 스폿 용접(spot welding)으로 연결하고, 고온에서의 전도성을 높이기 위해서 다시 한 번 Pt 메쉬와 Pt 와이어 접촉 부분을 Au(0.5 mm, 99.99%)를 이용하여 1,300 °C 이상으로 불꽃 용접하여 Pt 집전체를 제조하였다.
- [0035] 준비된 Pt 집전체와 MEA 연료극 촉매의 접합은 전기 전도성과 DCFC 고온 작동에 있어서 가장 훌륭한 접촉력을 발휘하는 Ag 페이스트를 사용하였다. Pt 집전체 오직 모서리 부분에만 은 접착제를 0.2 mg 최소한의 양으로 도포하여 Ag와 Pt의 계면 생성으로 인한 저항을 감소를 최소화하였고, 고체 탄소의 반응 사이트를 최대한 확보하였다.
- [0036] 1차적인 밀봉은 체 결합 시 MEA 양단에 충격 흡수가 가능한 마이카(mica) 종류인 가스켓(Thermiculite 866, USA)을 사용하였다. 하부 공기극과 상부 연료극 집전에 완료된 상태에서 상부 나사를 조절하여 공기극과 MEA 전체에 가해지는 압력을 조절하여 연료극과 공기극의 반응기를 밀봉하였다. MEA의 전체 두께와 촉매의 종류에 따라서 온도 상승 시 열팽창계수가 다르기 때문에 실험적인 방법을 통하여 상하부 나사를 조절을 통해서 최적의 상태로 압력을 조절하였다.
- [0037] 또한, DCFC 승온 시 수 초의 응답 속도로 1 kHz의 교류 임피던스를 측정 할 수 있는 AC-임피던스 측정기를 이용하여 고주파(1 kHz) 접촉 저항(ohmic resistance)의 변화를 관찰하여 필요 시 DCFC 성능 구동 전에 다시 한 번

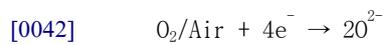
압력을 미동 나사로 조절하였다.

[0038] 마지막으로 세라믹 접착제(Cerambond 668, Aremco, USA)를 MEA와 반응기 주변에 회칠 하였다. 이는 약간의 틈새 (leakage)로 인해서 연료극 부분에 산소가 유입 되어 연료를 화학적으로 산화시킴으로써 실제 전기화학적 반응에 참여하는 탄소의 양을 줄일 뿐만 아니라 전체적인 연료전지 효율을 낮추게 되기 때문이다.

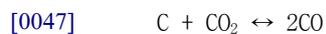
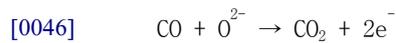
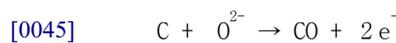
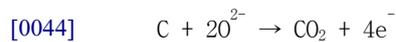
[0039] 연료를 준비하는 방법으로는 연료와 연료극 촉매가 만나는 삼상 계면에서 전기화학적 반응을 촉진하기 위해, 석탄 연료를 잘게 분쇄하였고, 50 메쉬 거름체를 이용하여 300 μm 이하의 석탄 입자만 선택하여 연료로 이용하였다. 이는 고체 석탄 연료 입자와 고체 연료극 반응의 효율을 높이기 위해서 석탄과 에틸렌 글리콜을 일정 비율로 혼합하여 점성이 있는 gel 상태 혼합하였다. 혼합된 연료는 1 cm²로 thermiculite에 의해서 마스킹된 연료극에 일정한 압력을 가한 상태로 담지하였다.

[0040] 이는 DCFC가 승온하는 동안 연료 입자들과 anode pore와의 물리적인 접촉을 증대하기 위해서이다. 나아가 고체 탄소 연료의 편리한 충진을 위해서 준비된 막전극접합체를 반응기와 연결할 때 연료극 반응기 몸체를 전후방으로 움직일 수 있게 슬라이딩 도어 방식을 채택하였다.

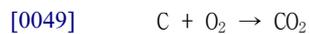
[0041] <공기극 반응>



[0043] <연료극 반응>



[0048] <전체 반응>



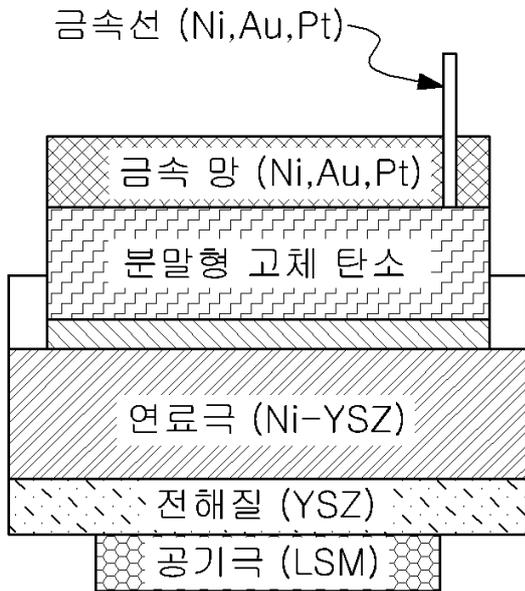
[0050] 이하에서 실시예 등을 통해 본 발명을 더욱 상세히 설명하고자 하며, 다만 이하에 실시예 등에 의해 본 발명의 범위와 내용이 축소되거나 제한되어 해석될 수 없다. 또한, 이하의 실시예를 포함한 본 발명의 개시 내용에 기초한다면, 구체적으로 실험 결과가 제시되지 않은 본 발명을 통상의 기술자가 용이하게 실시할 수 있음은 명백하다.

[0051] **실시예**

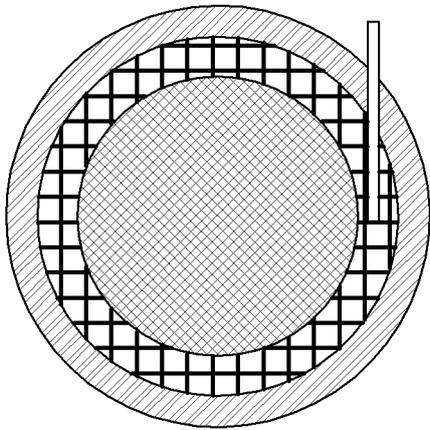
[0052] 석탄 0.5 g과 에틸렌글리콜 0.2 mL를 혼합하여 겔(gel)상태의 연료로 만들어 연료극 위에 담지하였다. 그리고 준비된 전지를 반응기 몸체에 있는 Pt 와이어와 연결하였다. DCFC 온도 승온 이전에는 연료극 반응부에 잔존하는 산소를 제거하기 위해서 30 분 이상 충분히 Ar 가스를 주입하여 환기시켰으며, 이후 연료극 가스 환기부 끝단에 하방 치환 방식으로 가스만 선택적으로 배출하였다. 온도는 고온로를 통해서 5 °C/min으로 승온하였으며, 연료극에는 계속적으로 일정 유량의 불활성기체(Ar 기체)를 주입하였고, 공기극에는 일정 유량의 공기 혹은 산소를 주입하였다. 본 발명의 실시 예에서는 반응기의 온도 범위를 750 °C에서 900 °C까지 50 °C 간격으로 실험하였고, 수 분 이상의 안정화 시간을 가진 이후 실험을 실시하였다.

도면

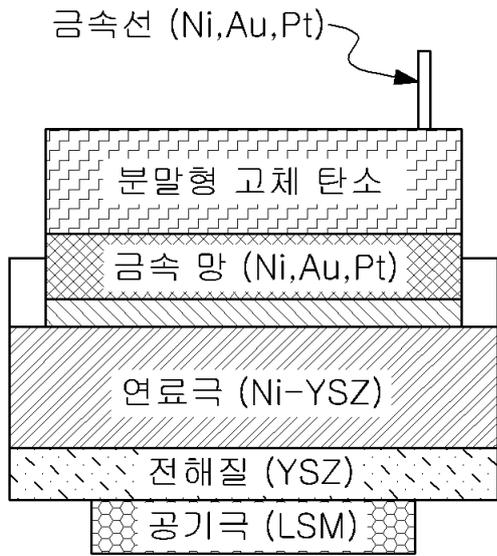
도면1a



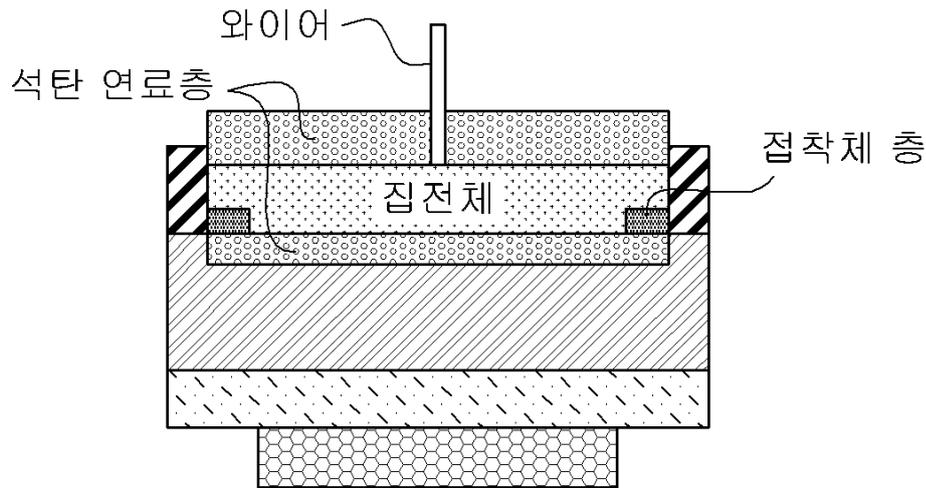
도면1b



도면2a



도면3a



도면3b

