(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2025-0043167
(43) 공개일자 2025년03월28일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
B01J 19/08 (2015.01) *B01J 19/00* (2018.01)
B01J 19/02 (2015.01) *C25D 3/50* (2006.01)
C25D 7/00 (2006.01)
(52) CPC특허분류
B01J 19/08 (2013.01)
B01J 19/0046 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2023-0126598
(22) 출원일자 2023년09월21일
심사청구일자 2023년09월21일

(71) 출원인
충남대학교산학협력단
대전광역시 유성구 대학로 99 (궁동, 충남대학교)
(72) 발명자
박찬필
대전광역시 서구 도안동로 183, 1506동 304호 (도안동, 대전 도안 아이파크)
송찬호
대전광역시 유성구 대학로75번길 24, 302호 (궁동)
(74) 대리인
특허법인 천지

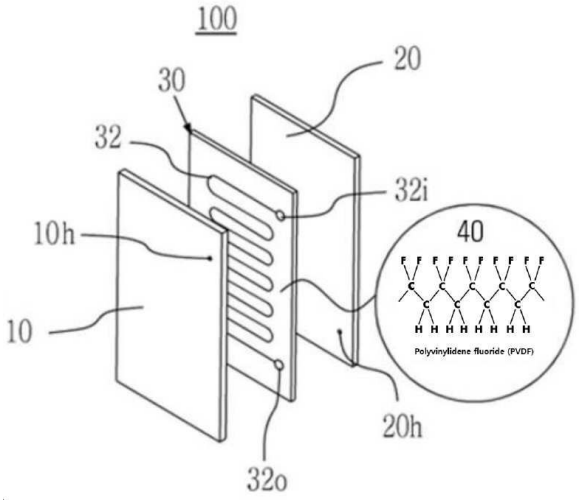
전체 청구항 수 : 총 10 항

(54) 발명의 명칭 **연속흐름형 전기화학반응기, 이의 제조방법 및 연속흐름형 전기화학반응기용 전극의 도금방법**

(57) 요 약

제조단가가 낮고 쉽게 교체가 용이하며, 용매 누수 문제를 쉽게 해결할 수 있는 연속흐름형 전기화학반응기가 제공된다. 본 발명의 일 측면에 따르면, 하나 이상의 제1 전극; 하나 이상의 제2 전극; 상기 제1 및 제2 전극 사이에 개재된, 하나 이상의 유로 판; 및 상기 유로 판의 적어도 일면 상의 접착부재; 를 포함하고, 상기 접착부재는 내화학성 접착수지를 포함하는, 연속흐름형 전기화학반응기를 제공한다.

대 표 도 - 도1



(52) CPC특허분류
B01J 19/0093 (2013.01)
B01J 19/02 (2013.01)
C25D 3/50 (2013.01)
C25D 7/00 (2023.05)
B01J 2219/00713 (2013.01)
B01J 2219/0072 (2013.01)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업
과제고유번호 2302000111
과제번호 1744-401
부처명 과학기술정보통신부
과제관리(전문)기관명 (재단)과학기술사업화진흥원
연구사업명 연구장비분야 전문인력양성
연구과제명 연구장비분야 전문인력양성
기 여 율 1/1
과제수행기관명 충남대학교 산학협력단
연구기간 2023.01.01 ~ 2024.12.31

명 세 서

청구범위

청구항 1

하나 이상의 제1 전극;

하나 이상의 제2 전극;

상기 제1 및 제2 전극 사이에 개재된, 하나 이상의 유로 판; 및

상기 유로 판의 적어도 일면 상의 접착부재; 를 포함하고,

상기 접착부재는 내화학성 접착수지를 포함하는,

연속흐름형 전기화학반응기.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 유로 판은,

그 표면에 형성된 유로와 상기 유로를 제외한 주변부를 포함하는,

연속흐름형 전기화학반응기.

청구항 3

제2항에 있어서,

상기 접착부재는 상기 주변부 상에 배치되는

연속흐름형 전기화학반응기.

청구항 4

제1항에 있어서,

상기 내화학성 접착수지는,

불소계 수지, 폴리우레탄계 수지, 폴리이미드 수지, 폴리아미드 수지 및 폴리에스테르계 수지 중 적어도 어느 하나 이상을 포함하는,

연속흐름형 전기화학반응기.

청구항 5

제4항에 있어서,

상기 불소계 수지는 PVDF(Polyvinylidene fluoride), PFA(Perfluoroalkoxy), 및 FEP(Fluorinated ethylene propylene) 중 적어도 어느 하나 이상을 포함하는,

연속흐름형 전기화학반응기.

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 제1 및 제2 전극은 각각 독립적으로

백금, 금, 니켈, 팔라듐, 은, 및 탄소계 전극 중 적어도 어느 하나 이상을 포함하는,

연속흐름형 전기화학반응기.

청구항 7

제1항에 있어서,

상기 제1 및 제2 전극은 탄성 소재를 포함하는,

연속흐름형 전기화학반응기.

청구항 8

제1항에 있어서,

상기 제1 및 제2 전극 중 적어도 어느 하나 이상의 표면 상에 박막이 형성된 것인,

연속흐름형 전기화학반응기.

청구항 9

(S1) 내화학성 접착수지를 포함하는 분산액을 준비하는 단계;

(S2) 상기 분산액을 유로 판의 적어도 일면 상에 도포하는 단계;

(S3) 상기 분산액이 도포된 유로 판의 일면 상에 제1 전극, 다른 면 상에 제2 전극을 배치시킨 후 압착하여 전극 어셈블리를 제조하는 단계; 및

(S4) 상기 전극 어셈블리를 건조 및 경화하여 연속흐름형 전기화학반응기를 제조하는 단계; 를 포함하고,

상기 유로 판은 그 내부에 형성된 유로를 포함하는,

연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법.

청구항 10

제9항에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법으로 연속흐름형 전기화학반응기를 준비하는 단계;

상기 유로에 전해질을 주입하는 단계; 및

전기도금방법으로 상기 제1 및 제2 전극 중 적어도 어느 하나의 표면에 박막을 형성하는 단계; 를 포함하고,

상기 박막은 상기 유로와 대응되는 위치에 형성되는 것인,

연속흐름형 전기화학반응기용 전극의 도금방법.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 연속흐름형 전기화학반응기에 관한 것으로, 보다 구체적으로 연속흐름형 전기화학반응기, 이의 제조방법 및 연속흐름형 전기화학반응기용 전극의 도금방법에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 연속흐름형 전기화학반응기는 시약, 반응물 및 선택적으로 용매가 반응기의 안으로 유입되는 동시에 반응 생성물이 배출되는 반응용기를 의미할 수 있다.

[0003] 한편, 연속흐름형 전기화학반응기의 일반적인 제조방법으로, 양극과 음극 사이에 미세유체 유로를 가지고 있는 판을 삽입하고, 추가로 상부판과 하부판을 도입하여, 이들을 암나사와 수나사로 체결하여 고정하는 연결 방식을 채용하고 있었다. 하지만 이러한 암나사-수나사 체결 방식에서는 결합을 위하여 별도의 상, 하부판이 필요하기 때문에 반응기의 제조단가가 높고, 이로 인해 반응기가 차지하는 전체 부피가 증가하는 문제점이 있었다. 이는 대량 스케일의 상업적 공정에서 불리한 점으로 작용할 수 있으며, 부적절한 체결 방식으로 인해 미세유체 유로 내부의 용액이 누출되는 문제가 발생할 수 있고, 특히 반응 용량을 늘리기 위한 대면적의 반응기를 제조하는 것에 어려움이 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0004] 본 발명의 목적은, 별도의 상/하부판을 사용하지 않기 때문에 제조비용이 절감됨과 동시에 반응기의 부피를 최소화할 수 있는 연속흐름형 전기화학반응기를 제공하는 것이다.

[0005] 본 발명의 다른 목적은, 탄력적이고 유연한 연속흐름형 전기화학반응기를 제공하는 것이다.

[0006] 본 발명의 또 다른 목적은 반응용액의 누수 문제를 효과적으로 방지할 수 있는 연속흐름형 전기화학반응기를 제공하는 것이다.

[0007] 본 발명의 또 다른 목적은 교체가 용이하고 전기적 방법으로 화합물을 합성하는 제약, 화학분야 등의 여러 기술분야에 응용될 수 있는 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법을 제공하는 것이다.

[0008] 본 발명의 또 다른 목적은 고가의 금속을 저가의 금속 표면에 도금하여 원가를 절감할 수 있는 연속흐름형 전기화학반응기용 전극의 도금방법을 제공하는 것이다.

[0009] 본 발명의 목적들은 이상에서 언급한 목적으로 제한되지 않으며, 언급되지 않은 본 발명의 다른 목적 및 장점들은 하기의 설명에 의해서 이해될 수 있고, 본 발명의 실시예에 의해 보다 분명하게 이해될 것이다. 또한, 본 발명의 목적 및 장점들은 청구범위에 나타낸 수단 및 그 조합에 의해 실현될 수 있음을 쉽게 알 수 있을 것이다.

과제의 해결 수단

[0010] 상기 목적을 달성하기 위한 본 발명의 제1 측면에 따르면, 하나 이상의 제1 전극; 하나 이상의 제2 전극; 상기 제1 및 제2 전극 사이에 개재된, 유로 판; 및 상기 유로 판의 적어도 일면 상의 접착부재; 를 포함하고, 상기 접착부재는 내화학성 접착수지를 포함하는, 연속흐름형 전기화학반응기를 제공한다. 본 발명의 몇몇 실시예에 따르면, 제1 전극, 제2 전극, 유로 판 및 접착부재는 하나의 단일 모듈로 정의될 수 있고, 이 때 연속흐름형 전기화학반응기는 2 이상의 단일 모듈이 적층된 것일 수 있다. 일반적으로 연속흐름형 전기화학반응기가 적층되는 단일 모듈의 개수가 많을수록 체결방식에 문제가 발생할 가능성이 더욱 높아질 수 있는데, 본 발명을 채용하면 전극과 유로 판 간의 연결 내지 접착 효과가 더욱 상승될 수 있다.

[0011] 본 발명의 제2 측면에 따르면, 상기 제1 측면에 있어서 상기 유로 판은, 그 내부에 형성된 유로 및 상기 유로를 제외한 주변부를 포함할 수 있다.

[0012] 본 발명의 제3 측면에 따르면, 상기 제2 측면에 있어서, 상기 접착부재는 상기 주변부 상에 배치될 수 있다.

[0013] 본 발명의 제4 측면에 따르면, 상기 제1 내지 제3 측면 중 어느 하나에 있어서, 상기 내화학성 접착수지는, 불소계 수지, 폴리우레탄계 수지, 폴리이미드 수지, 폴리아미드 수지 및 폴리에스테르계 수지 중 적어도 어느 하나 이상을 포함할 수 있다.

[0014] 본 발명의 제5 측면에 따르면, 상기 제4 측면에 있어서 상기 불소계 수지는 PVDF(Polyvinylidene fluoride), PFA(Perfluoroalkoxy), 및 FEP(Fluorinated ethylene propylene) 중 적어도 어느 하나 이상을 포함할 수 있다.

[0015] 본 발명의 제6 측면에 따르면, 상기 제1 내지 제5 측면 중 어느 하나에 있어서 상기 제1 및 제2 전극은 각각 독립적으로 백금, 금, 니켈, 팔라듐, 은, 및 탄소계 전극 중 적어도 어느 하나 이상을 포함할 수 있다. 예를

들어, 상기 제1 및 제2 전극은 각각 독립적으로 상술한 조성의 다양한 조합으로 구성된 도금 전극을 포함할 수 있다.

[0016] 본 발명의 제7 측면에 따르면, 상기 제1 내지 제5 측면 중 어느 하나에 있어서 상기 제1 및 제2 전극은 탄성 소재를 포함할 수 있다.

[0017] 본 발명의 제8 측면에 따르면, 상기 제1 내지 제7 측면 중 어느 하나에 있어서, 상기 제1 및 제2 전극 중 적어도 어느 하나 이상의 표면 상에 박막이 형성된 것일 수 있다.

[0018] 본 발명의 제9 측면에 따르면, (S1) 내화학성 접착수지를 포함하는 분산액을 준비하는 단계; (S2) 상기 분산액을 유로 판의 적어도 일면 상에 도포하는 단계; (S3) 상기 분산액이 도포된 유로 판의 일면 상에 제1 전극, 다른 면 상에 제2 전극을 배치시킨 후 압착하여 전극 어셈블리를 제조하는 단계; 및 (S4) 상기 전극 어셈블리를 건조 및 경화하여 연속흐름형 전기화학반응기를 제조하는 단계; 를 포함하고, 상기 유로 판은 그 내부에 형성된 유로를 포함하는, 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법을 제공한다. 구체적으로 상기 분산액이 도포된 유로 판의 일면은 상술한 주변부일 수 있다.

[0019] 본 발명의 제10 측면에 따르면, 상기 제9 측면에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법으로 연속흐름형 전기화학반응기를 준비하는 단계; 상기 유로에 전해질을 주입하는 단계; 및 전기도금방법으로 상기 제1 및 제2 전극 중 적어도 어느 하나의 표면에 박막을 형성하는 단계를 포함하고, 상기 박막은 상기 유로와 대응되는 위치에 형성되는 것인, 연속흐름형 전기화학반응기용 전극의 도금방법을 제공한다.

[0020] 상기 과제의 해결 수단은, 본 발명의 특징을 모두 열거한 것은 아니다. 본 발명의 다양한 특징과 그에 따른 장점과 효과는 아래의 구체적인 실시예를 참조하여 보다 상세하게 이해될 수 있을 것이다.

발명의 효과

[0021] 본 발명의 일 측면(Aspect)에 따르면, 제1 전극; 제2 전극; 상기 제1 및 제2 전극 사이에 개재된, 하나 이상의 유로 판 결합을 위한 별도의 상/하부판을 필요로 하지 않기 때문에 반응기의 제조가 용이하며 제조단가가 낮은 연속흐름형 전기화학반응기를 구현할 수 있다.

[0022] 본 발명의 다른 측면에 따르면, 용매 누수의 문제를 효과적으로 방지할 수 있는 연속흐름형 전기화학반응기를 구현할 수 있다.

[0023] 본 발명의 또 다른 측면에 따르면, 고가의 귀금속 전극을 저렴하게 제조할 수 있는 방법을 구현할 수 있다.

[0024] 상술한 효과와 더불어 본 발명의 구체적인 효과는 이하 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용을 설명하면서 함께 기술한다

도면의 간단한 설명

[0025] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 연속흐름형 전기화학반응기를 나타낸 것이다.

도 2는 본 발명의 일 실시예에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법을 나타낸 플로우 차트이다.

도 3은 실시예 1에 따른 연속흐름형 전기화학반응기에서 두 개의 전극과 유로 판을 결합하기 전 사진이다

도 4는 PVDF의 용매 별 용출 여부에 대한 표이다.

도 5는 실시예 1에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 생성물에 대한 수율을 나타낸 것이다.

도 6은 실시예 3에 따른 전극의 단면을 나타낸 것이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0026] 본 명세서에 여러 과제해결수단이 기재되어 있을 경우, 본 발명의 효과는 각 과제해결수단 자체로부터 비롯된 작용효과뿐만 아니라, 각 과제해결수단이 유기적으로 결합됨에 따라 발생하는 효과도 포함하는 것으로 정의될 수 있다. 예를 들어 본 명세서에서 과제해결수단 1 및 2가 각각 독립적으로 기술된다고 하더라도 문맥상 명백히 다르게 뜻하지 않는 한, 과제해결수단 1 및 2가 유기적으로 결합됨으로써 발생하는 효과도 본 발명의 효과에 포함될 수 있다.

[0027] 본 명세서에서 단수의 표현은 문맥 상 명백하게 다르게 뜻하지 않는 한, 복수의 표현을 포함한다.

[0028] 본 명세서에서 용어 '내지'를 사용하여 나타낸 수치의 범위는, 상기 용어의 앞과 뒤에 기재된 값을 각각 하한값과 상한 값으로 포함하는 수치의 범위를 나타낸다. 임의의 수치범위의 상한과 하한으로의 수치 값이 각각 복수 개로 개시된 경우, 본 명세서에서 개시하는 수치의 범위는 복수의 하한 값 중 임의의 하나의 값 및 복수의 상한 값 중 임의의 하나의 값을 각각 하한 값 및 상한 값으로 하는 임의의 수치의 범위로 이해될 수 있다.

[0029] 본 명세서에서 "부재"는 층(Layer) 형태의 연속적인 형태뿐만 아니라 부분적으로 도포되어 비연속적인 형태까지 포괄하는 의미로 정의될 수 있다. 예를 들어, 기재의 바로 위에 부재가 배치될 경우 상기 부재는 기재의 일부 또는 전부를 덮을 수 있고, 균일 또는 불균일하게 도포된 상태일 수 있다. 예를 들어, 일 부재의 바로 위(Directly on)에 다른 부재가 배치될 경우 상기 일 부재에 대한 다른 부재의 덮힘률(Coverage)은 0.1% 이상, 1% 이상, 5% 이상, 10% 이상, 20% 이상, 30% 이상, 40% 이상, 50% 이상, 60% 이상, 70% 이상, 80% 이상, 85% 이상, 90% 이상, 95% 이상 또는 99% 이상으로 정의될 수 있다.

[0030] 본 발명의 일 측면에 따르면, 하나 이상의 제1 전극; 하나 이상의 제2 전극; 상기 제1 및 제2 전극 사이에 개재된, 하나 이상의 유로 판; 및 상기 유로 판의 적어도 일면 상의 접착부재; 를 포함하고, 상기 접착부재는 내화학성 접착수지를 포함하는, 연속흐름형 전기화학반응기를 제공한다. 종래에는 연속흐름형 전기화학반응기의 일반적인 제조방법으로, 양극과 음극 사이에 미세유체 유로를 형성하기 위한 유로 판과 상부와 하부에 판을 별도로 도입한 후, 이를 암나사와 수나사로 체결하여 고정하는 접합방식을 채용하고 있었다. 하지만 이러한 암나사-수나사 체결 방식에서는 별도의 판이 필요하기 때문에 반응기 제작 단가가 높고, 이로 인해 반응기가 차지하는 전체 부피가 증가하는 문제점이 있었다. 이는 대량 스케일의 상업적 공정에서 불리한 점으로 작용할 수 있으며, 부적절한 체결 방식으로 인해 용액이 누출되는 문제가 발생하였다. 본 발명의 일 측면에 따르면, 내화학성 접착수지를 포함하는 접착부재를 통해 전극과 유로 판을 접착함으로써, 별도의 몰드를 사용하지 않기 때문에 제조비용이 절감됨과 동시에 반응기의 부피를 최소화하는 효과를 구현할 수 있다. 본 발명의 다른 측면에 따르면, 유연한 접착부재로 인해 탄력적이고 유연한 반응기를 구현함과 동시에 반응용액의 누수 문제를 효과적으로 방지할 수 있다.

[0031] 이하에서는, 본 발명의 구성을 보다 상세히 설명한다.

[0032] **1. 연속흐름형 전기화학반응기**

[0033] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 연속흐름형 전기화학반응기를 나타낸 것이다.

[0034] 도 1을 참고하면, 본 발명에 따른 연속흐름형 전기화학반응기(100)는 제1 전극(10), 제2 전극(20), 유로 판(30) 및 접착부재(40)를 포함한다.

[0035] 본 발명에 따른 제1 전극(10)은 환원반쪽반응이 일어나는 환원극(Cathode)일 수 있다. 예를 들어, 상기 제1 전극(10)은 특별히 제한되지 않고 환원반쪽반응을 유도할 수 있는 단일층 또는 다중층의 금속 전극 또는 합금 전극일 수 있다. 구체적으로 상기 제1 전극(10)은 백금, 금, 니켈, 팔라듐, 은, 및 탄소계 전극으로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다. 또 다른 예로 상기 제1 전극(10)은 니켈 기재; 상기 니켈 기재 상의 백금 코팅층을 포함할 수 있다.

[0036] 본 발명에 따른 제1 전극(10)은 그 표면에 형성된 제1 구멍(10h)을 포함할 수 있다. 구체적으로 상기 제1 구멍(10h)은 반응물이 유입되어 후술할 유로 판(30) 내의 유로(32)로 이동하는 경로를 제공할 수 있다. 예를 들어 상기 제1 구멍(10h)은 특별히 제한되지 않고, 레이저 가공 방법 또는 기계적 가공 방법 등을 통하여 형성될 수 있다. 구체적으로 상기 제1 구멍(10h)은 후술할 유로(32)의 입구(32i)와 대응되는 위치에 형성될 수 있다.

[0037] 예를 들어, 상기 제1 전극(10)의 두께는 특별히 제한되지 않고, 0.05㎜ 내지 2.5㎜일 수 있다.

[0038] 본 발명에 따른 제2 전극(20)은 산화반쪽반응이 일어나는 산화극(Anode)일 수 있다. 예를 들어, 상기 제2 전극(20)은 상기 제1 전극(10)과 동일하거나 상이할 수 있고, 구체적으로 동일할 수 있다. 여기서 상기 제2 전극(20)은 특별히 제한되지 않고 산화반쪽반응을 유도할 수 있는 단일층 또는 다중층의 금속 전극 또는 합금 전극일 수 있다. 더욱 구체적으로 상기 제2 전극(20)은 백금, 금, 니켈, 티타늄, 팔라듐, 은, 및 탄소계 전극으로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다. 또 다른 예로 상기 제2 전극(20)은 니켈 기재; 상기 니켈 기재 상의 백금 코팅층을 포함할 수 있다.

[0039] 본 발명에 따른 제2 전극(20)은 그 표면에 형성된 제2 구멍(20h)을 포함할 수 있다. 구체적으로 상기 제2 구멍(20h)은 유로 판(30)의 유로(32)에서 생성물이 외부로 배출하는 경로를 제공할 수 있다. 예를 들어 상기 제2 구멍(20h)은 레이저 가공 방법, 기계적 가공 방법 등을 통하여 형성될 수 있다. 구체적으로 상기 제2 구멍(20h)은

후술할 유로(32)의 출구(32o)와 대응되는 위치에 형성될 수 있다.

[0040] 예를 들어, 상기 제2 전극(20)의 두께는 0.05㎜ 내지 2.5㎜일 수 있다.

[0041] 본 발명에 따른 유로 판의 유로(32)는 전기화학적 반응을 통해 반응물이 생성물로 변환되는 반응이 일어나는 곳이다. 구체적으로 상기 유로(32)는 상기 유로 판(30)의 내부 중 일부를 관통하도록 형성될 수 있다.

[0042] 예를 들어, 상기 유로(32)의 형상은 특별히 제한되지 않고 다양한 형상으로 변형될 수 있다. 구체적으로 상기 유로(32)는 지그재그 형상 또는 구불구불한 구조(Serpentine structure)로 형성될 수 있다. 여기서 유로(32)의 형상이 지그재그 형상 또는 구불구불한 구조를 형성할 경우 반응물들의 전달 효율이 더욱 높아져 생성물로의 전환율이 더욱 높아질 수 있다.

[0043] 본 발명에 따른 유로 판(30)의 유로(32)는 일 말단에 구비된 입구(32i) 및 다른 말단에 구비된 출구(32o)를 포함할 수 있다. 전기화학반응을 통해 반응물은 상기 입구(32i)에서 출구(32o)로 이동함에 따라 생성물로 전환될 수 있다.

[0044] 본 발명에 따른 유로 판(30)은 하나 이상으로 구비된다. 일반적으로 체결방식으로 유로 판과 전극을 연결하되, 유로 판(30)이 하나 이상 구비될 경우, 유로 판의 내부에 패터닝된 유로도 하나 이상으로 구비됨에 따라 합성과정에서 반응용액의 누수가 발생하는 위험이 더욱 높아질 수 있다. 본 발명의 몇몇 실시예에 따르면, 상기 유로 판(30)이 하나 이상으로 구비됨에도 불구하고 내화학성 접착수지로 전극과 유로 판을 서로 접착 및 연결함으로써, 반응용액의 누수를 효과적으로 방지할 수 있다.

[0045] 본 발명에 따른 접착부재(40)는 상기 제1 및 제2 전극(10, 20)과 유로 판(30)을 서로 연결 또는 접착할 수 있다.

[0046] 본 발명에 따른 접착부재(40)는 상기 유로 판(30)의 적어도 일면 상에 배치될 수 있고, 구체적으로 상기 유로 판(30)의 양면 상에 배치될 수 있다. 여기서 접착부재(40)는 상기 유로 판(30)의 적어도 일면의 일부 또는 전부를 덮을 수 있다. 더욱 구체적으로 상기 접착부재(40)는 상기 제1 전극(10) 및 상기 유로 판(30) 사이에 개재되고, 상기 제2 전극(20) 및 상기 유로 판(30) 사이에 개재될 수 있다.

[0047] 본 발명의 몇몇 실시예에 따르면, 상기 유로 판(30)은 유로(32) 및 상기 유로(32)을 제외한 주변부를 포함할 수 있다. 구체적으로 상기 접착부재(40)는 상기 주변부 상에 배치될 수 있고, 더욱 구체적으로 상기 주변부의 일부 또는 전부 상에 배치될 수 있다. 본 발명의 몇몇 실시예에 따르면, 상기 접착부재(40)가 상기 주변부 상에 배치됨에 따라 제1 및 제2 전극(10, 20)과 유로 판(30)의 접착력이 더욱 높아져 반응기의 구조적 안정성이 보다 향상될 수 있다.

[0048] 본 발명에 따른 접착부재(40)는 다양한 반응물, 중간생성물 또는 생성물에 대하여 내화학성을 갖고 접착 기능을 갖는 내화학성 접착수지를 포함한다. 구체적으로 상기 내화학성 접착수지가 접착부재에 포함됨으로써, 전극과 유로 판(30)을 효과적으로 접착 내지 연결시킴으로써, 유로 판(30)과 전극을 접착 내지 연결할 수 있다.

[0049] 예를 들어, 상기 접착부재(40)의 두께는 특별히 제한되지 않고, 10 내지 20 ㎛일 수 있다.

[0050] 예를 들어, 상기 내화학성 접착수지는 특별히 제한되지 않고, 구체적으로 불소계 수지, 폴리우레탄계 수지, 폴리이미드 수지, 폴리아미드 수지 및 폴리에스테르계 수지 중 적어도 어느 하나 이상을 포함할 수 있고, 더욱 구체적으로 불소계 수지를 포함할 수 있다. 본 발명의 몇몇 실시예에 따르면, 상기 내화학성 접착수지로 불소계 수지를 사용할 경우 불소원자를 함유하는 구조로 인해 내화학성이 보다 강화될 수 있다.

[0051] 구체적으로 상기 불소계 수지는 PVDF(Polyvinylidene fluoride) PFA(Perfluoro alkoxy), 및 FEP(Fluorinated ethylene propylene) 중 적어도 어느 하나 이상을 포함할 수 있다.더욱 구체적으로 상기 불소계 수지는 PVDF(Polyvinylidene fluoride)를 포함할 수 있다. 여기서 PVDF(Polyvinylidene fluoride)의 중량평균 분자량은 520,000 내지 534,000g/mol일 수 있다. 상기 PVDF의 중량평균 분자량이 상기 수치 범위 내를 만족할 때, 접착 기능이 충분히 구현될 수 있다.

[0052] 더욱 구체적으로 상기 폴리우레탄계 수지는 폴리아이소시아네이트 성분과 폴리올 성분의 반응 생성물을 포함할 수 있다. 여기서 폴리아이소시아네이트 성분은 지방족 아이소시아네이트 화합물, 지방족 사이클릭 아이소시아네이트 화합물 및 방향족 아이소시아네이트 화합물 중 어느 하나 이상을 포함할 수 있다. 여기서 폴리올 성분은 적어도 2개의 하이드록실 말단기를 포함하는 방향족 및/또는 지방족(예: 폴리에스테르, 폴리카프로락톤, 또는 폴리카보네이트) 폴리올을 포함할 수 있다. 더욱 구체적으로 상기 폴리아미드 수지는 핫멜트 접착제일 수 있다.

더욱 구체적으로 상기 폴리에스테르계 수지는 수분산성 폴리에스테르계 수지를 포함할 수 있다.

[0053] 본 발명의 몇몇 실시예에 따르면, 상기 제1 및 제2 전극(10, 20)은 탄성 소재를 포함할 수 있다. 구체적으로 상기 제1 및 제2 전극이 탄성 소재를 구비할 경우 유연한 접착부재와 함께 조합되어 탄력적이고 유연한 반응기가 구현될 수 있다. 예를 들어 여기서 제1 및 제2 전극(10, 20)은 각각 독립적으로 탄성 특성을 갖는 그래파이트; 또는 알루미늄, 구리 등의 호일(Foil) 소재의 전극; 일 수 있다.

[0054] 본 발명의 몇몇 실시예에 따르면, 상기 제1 및 제2 전극(10, 20) 중 적어도 어느 하나 이상의 표면 상에 박막이 형성된 것일 수 있다. 예를 들어, 상기 박막의 형성방법은 몇몇 실시예에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 상기 유로(32)와 대응되는 위치에 도포하는 단계를 포함할 수 있다. 예를 들어 상기 박막은 해당 기술분야에서 일반적으로 상용되는 전기도금 방법으로 형성될 수 있다.

[0055] **2. 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법**

[0056] 본 발명의 다른 측면에 따르면, (S1) 내화학성 접착수지를 포함하는 분산액을 준비하는 단계; (S2) 상기 분산액을 유로 판(30)의 적어도 일면 상에 도포하는 단계; (S3) 상기 분산액이 도포된 유로 판(30)의 일면 상에 제1 전극, 다른 면 상에 제2 전극을 배치시킨 후 압착하여 전극 어셈블리를 제조하는 단계; 및 (S4) 상기 전극 어셈블리를 건조 및 경화하여 연속흐름형 전기화학반응기를 제조하는 단계; 를 포함하고, 상기 유로 판(30)은 내부에 유로를 포함하는, 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법을 제공한다. 구체적으로 상기 유로 판(30)의 일면은 상술한 유로(32)를 제외한 주변부일 수 있다.

[0057] 본 발명에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법은 다양한 반응물, 중간생성물 또는 생성물에 대한 내화학성을 충분히 구현함과 동시에 접착 기능을 구현하기 위해 (S1) 내화학성 접착수지를 포함하는 분산액을 준비하는 단계를 포함한다.

[0058] 구체적으로 상기 분산액은 상기 내화학성 접착수지를 분산시키는 분산매를 포함할 수 있다. 예를 들어, 상기 분산매는 특별히 제한되지 않고 내화학성 접착수지의 종류에 따라 적절히 선택될 수 있다. 구체적으로 상기 분산매는 N,N-디메틸포름아마이드를 포함할 수 있다. 예를 들어, 상기 내화학성 접착수지와 상기 분산매의 부피비는 1:3 내지 1:7일 수 있고, 구체적으로 1:4 내지 1:6일 수 있고, 더욱 구체적으로 1:4 내지 1:5일 수 있다.

[0059] 도 1을 참고하면, 본 발명에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법은 유로 판(30)과 제1 및 제2 전극(10, 20) 간을 서로 접착하기 위해 (S2) 상기 분산액을 유로 판(30)의 적어도 일면 상에 도포하는 단계를 포함한다. 구체적으로 상기 분산액은 상기 유로 판(30)의 적어도 일면의 일부 또는 전부 상에 도포될 수 있다.

[0060] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 상기 분산액을 상기 유로 판(30)의 양면 상에 도포할 수 있다. 구체적으로 상기 분산액을 상기 유로 판(30)의 양면 상에 도포함으로써, 제1 전극(10)과 유로 판(30); 제2 전극(20)과 유로 판(30) 간에 접착력이 보다 향상되어 전극과 유로 판에 대한 밀봉 효과가 더욱 상승될 수 있다.

[0061] 예를 들어 상기 (S2) 단계로 특별히 제한되지 않고 다양한 코팅방법이 이용될 수 있다. 구체적으로 상기 (S2) 단계는 스핀코팅, 또는 스프레이 코팅 등의 다양한 방법을 포함할 수 있다.

[0062] 본 발명의 다른 실시예에 따르면, 상기 분산액이 골고루 도포되도록 유도하기 위해 상기 (S2) 단계는 상기 분산액을 상기 유로 판의 적어도 일면 상에 스핀코팅하는 단계를 포함할 수 있다. 구체적으로 상기 스핀코팅하는 단계는 2,000rpm 이상으로 5분 이상 회전하는 단계일 수 있다. 여기서 상기 스핀코팅하는 단계의 회전수 및 회전시간이 상기 수치 범위 내를 만족함으로써, 내화학성 접착수지를 포함하는 분산액이 유로 판의 표면에 골고루 도포될 수 있다.

[0063] 본 발명에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법은 유로 판과 전극을 서로 연결하기 위해 (S3) 상기 분산액이 도포된 유로 판의 일면 상에 제1 전극, 다른 면 상에 제2 전극을 배치시킨 후 압착하여 전극 어셈블리를 제조하는 단계를 포함한다. 구체적으로 상기 (S3) 단계를 통해 제1 전극, 유로 판 및 제2 전극의 순서로 적층체가 제조될 수 있다. 여기서 상기 적층체를 압착하여 전극 어셈블리를 제조하는 단계는 8 kPa의 압력 조건 하에서 2시간 동안 수행될 수 있다.

[0064] 본 발명에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법은 (S4) 상기 전극 어셈블리를 건조 및 경화하여 연속흐름형 전기화학반응기를 제조하는 단계를 포함한다.

[0065] 구체적으로 상기 전극 어셈블리를 건조하기 위한 수단으로 해당 기술분야에서 상용되는 다양한 건조 장치가 이용될 수 있다. 예를 들어, 상기 건조 장치의 온도는 200℃ 이상 또는 380℃ 이상일 수 있고, 건조시간은 건조온

도에 따라 적절히 조절될 수 있다.

[0066] 예를 들어, 상기 건조된 전극 어셈블리를 경화하는 단계는 상온에서 1일 이상 동안 수행될 수 있다.

[0067] 도 2는 본 발명의 일 실시예에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법을 나타낸 플로우 차트이다.

[0068] 도 2를 참고하면, 본 발명의 일 실시예에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법은 PVDF와 DMF가 1:5(v/v)의 부피비로 혼합된 혼합물을 100℃에서 20분 간 가열하여 분산액을 제조하는 단계(a), 상기 분산액을 유로 판의 적어도 일면에 도포한 후 2,500rpm에서 5분 동안 스핀코팅하는 단계(b), 상기 분산액이 스핀코팅된 유로 판의 상부 및 하부에 양 전극을 덮은 후 압착기로 압착하여 전극 어셈블리를 제조하는 단계(c) 및 전극 어셈블리를 200℃의 오븐에서 건조한 후 상온에서 하루 간 경화하여 연속흐름형 전기화학반응기를 제조하는 단계(d)를 포함할 수 있다.

[0069] **3. 연속흐름형 전기화학반응기용 전극의 도금방법**

[0070] 본 발명의 또 다른 측면에 따르면, 몇몇 실시예에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 제조방법으로 연속흐름형 전기화학반응기를 준비하는 단계; 상기 유로에 전해질을 주입하는 단계; 및 전기도금방법으로 상기 제1 및 제2 전극 중 적어도 어느 하나의 표면에 박막을 형성하는 단계; 를 포함하고, 상기 박막은 상기 유로와 대응되는 위치에 형성되는 것인, 연속흐름형 전기화학반응기용 전극의 도금방법을 제공한다.

[0071] 본 발명에 따른 유로에 전해질을 주입할 경우 유로와 대응되는 전극의 위치에 박막이 형성될 수 있다.

[0072] 본 발명에 따른 전해질은 특별히 제한되지 않고 전기도금 분야에서 상용되는 일반적인 전해질을 포함할 수 있다. 예를 들어, 도금의 대상이 되는 전극의 표면에 박막을 형성하고자 할 경우, 상기 전해질은 해당 박막의 원료가 되는 전구체를 포함할 수 있다. 예를 들어 상기 전해질이 백금전구체 용액을 포함할 경우 박막은 백금을 포함할 수 있다.

[0073] 전기도금방법은 전해질을 통해서 전기를 흘러주어 양극의 금속이온을 음극에서 전착 석출하게 하는 방법이다. 본 발명에 따르면, 상기 전기도금방법을 이용하여 상기 유로와 대응되는 위치(전극)에 박막을 쉽게 형성함으로써, 고가의 박막을 쉽게 형성할 수 있다.

[0074] 이하, 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 본 발명의 실시예에 대하여 상세히 설명하나, 이는 하나의 예시에 불과할 뿐, 본 발명의 권리범위가 다음 내용에 의해 제한되지 아니한다.

[0075] **[제조예 1: 연속흐름형 전기화학반응기의 제조]**

[0076] **<실시예 1: 연속흐름형 전기화학반응기>**

[0077] PVDF 분산액의 제조 단계:

[0078] 중량평균분자량(M_w)이 530,000g/mol인 PVDF(Polyvinylidene fluoride)와 DMF가 1:5(v/v)의 부피비로 혼합된 혼합물을 100℃에서 20분 동안 가열하여 PDVF 분산액을 제조하였다.

[0079] 유로 판(30)의 양면에 상기 PVDF 분산액을 도포한 후 스핀코팅하는 단계:

[0080] 유로를 제외한 유로 판의 주변부에 상기 PVDF 분산액을 도포한 후, 상기 PVDF 분산액이 도포된 유로 판을 스핀코팅 장치로 2,500rpm에서 5분 동안 회전하여 상기 PVDF 분산액이 골고루 퍼지도록 유도하였다.

[0081] 상기 PVDF 분산액이 코팅된 유로 판의 상부 및 하부에 양 전극이 형성된 전극 어셈블리를 제조한 후 건조 및 경화 단계를 거쳐 전기화학반응기를 제조하는 단계:

[0082] 상기 PVDF 분산액이 스핀코팅된 유로 판, 상기 유로 판의 상부에 Ni 기재 및 Pt 코팅층으로 구성된 양극을, Ni 기재 및 Pt 코팅층으로 구성된 음극(Pt)을 배치시켜 양극, 상기 PVDF 분산액이 코팅된 유로 판 및 음극의 순서로 적층된 적층체를 제조하였다. 상기 적층체를 압착기(바이스)로 8 kPa의 압력으로 2시간 동안 압착하여 전극 어셈블리를 제조하였다. 상기 전극 어셈블리를 압착한 채로 200℃의 오븐에 넣은 후 2시간 동안 열풍 건조한 다음, 상온에서 1일 동안 경화하여 최종적으로 연속흐름형 전기화학반응기를 제조하였다.

[0083] **<실시예 2-1 및 2-2: 실시예 1과 달리 내화학성 접착수지의 종류가 상이한 경우>**

[0084] FEP, 또는 PFA 수성 나노 분산액의 준비 단계:

[0085] 퍼플루오로 알콕시(Perfluoroalkoxy, PFA) 수지 또는 FEP(Fluorinated ethylene propylene) 수지의 평균 입경은 150nm이며, 고형분의 함량이 55 중량%인 수성 나노 분산액을 각각 준비하였다.

[0086] 유로 판(30)의 양면에 상기 수성 나노 분산액을 도포한 후 스핀코팅하는 단계:

[0087] 유로를 제외한 유로 판의 주변부에 상기 각각의 수성 나노 분산액을 도포한 후, 상기 분산용액이 도포된 유로 판을 스핀 코팅장치로 2500rpm에서 5분 동안 회전하여 상기 나노 분산액이 주변부에 골고루 퍼지도록 유도하였다.

[0088] 상기 수성 나노 분산액이 분산된 유로 판의 상부 및 하부에 양 전극이 형성된 전극 어셈블리를 제조한 후 건조 및 경화 단계를 거쳐 전기화학반응기를 제조하는 단계:

[0089] 상기 나노 분산액이 스핀 코팅된 유로 판, 상기 유로 판의 상부에 양극을, 상기 유로 판의 하부에 음극을 배치시켜 양극, 상기 나노 분산액이 코팅된 유로 판 및 음극의 순서로 적층된 적층체를 제조하였다. 상기 적층체를 압착기로 8 kPa의 압력으로 압착하여 전극 어셈블리를 제조하였다. 상기 압착한 전극 어셈블리를 400℃의 오븐에 넣은 후 3시간 동안 열풍 건조 한 다음, 상온에서 그대로 냉각 후 해체하여 최종적으로 실시예 2-1 및 2-2에 따른 각각의 연속흐름형 전기화학반응기를 제조하였다.

[0090] **[실험예 1: 연속흐름형 전기화학반응기의 단면 사진]**

[0091] 도 3은 실시예 1에 따른 연속흐름형 전기화학반응기에서 두 개의 전극과 유로 판을 결합하기 전 사진이다.

[0092] 도 3을 참고하면, 실시예 1에 따른 연속흐름형 전기화학반응기에서 유로 판의 내부에 입구 및 출구가 구비된 유로가 형성되어 있음을 확인할 수 있다. 도 3에 도시된 구성요소는 도 1에서 상술한 설명과 중복되므로 구성요소에 관한 상세한 설명은 생략한다.

[0093] **[실험예 2: PVDF의 용매 별 용출 여부 확인]**

[0094] 도 4는 PVDF의 용매 별 용출 여부에 대한 표이다.

[0095] 도 4를 참고하면, PVDF는 N,N-디메틸포름아미드, N-메틸-2-피롤리돈, 디메틸 아세트아마이드, 및 디메틸설폭사이드를 제외한 나머지 용매에 대해 용출이 발생하지 않는 것을 확인할 수 있다.

[0096] **[실험예 3: 연속흐름반응기의 효율 평가]**

[0097] 도 5는 실시예 1에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 생성물에 대한 수율을 나타낸 것이다. 구체적으로 연속흐름반응기의 효율 평가를 위해, 반응물로 N-메틸 인돌 0.5mmol, 및 p-톨루엔싸이올 1.0mmol을 선택하였다. 상기 반응물을 시린지 펌프(Syringe pump)를 통해 실시예 1에 따른 연속흐름형 전기화학반응기에 주입한 후, 8mA/cm^2, 실온(r.t) 및 3.5분 동안 반응을 진행하여 생성물의 수율을 측정하였다.

[0098] 도 5를 참고하면, 배치(Batch) 방식의 반응기 대비 실시예 1에 따른 연속흐름형 전기화학반응기를 이용할 경우 생성물의 수율이 71%로 높아지는 것을 확인할 수 있다.

[0099] **[제조예 2: 유로의 패턴에 따라 전극의 도금방법]**

[0100] **<실시예 3: 유로의 패턴에 따라 Pt 박막이 형성된 전극의 제조>**

[0101] 상기 실시예 1에 따른 연속흐름형 전기화학반응기의 유로 판의 내부에 구비된 유로를 20 중량%의 옥살산 수용액 및 증류수로 세척하였다. 1.0M HCl 용액에 0.1M H_2PtCl_6가 용해된 백금전구체 용액을 10um/min의 속도값의 펌프로 흘려주며, 3 내지 10mA/cm^2의 전류밀도를 2분 동안 가하여 상기 유로의 표면의 패턴과 대응되도록, 음극의 표면에 Pt 박막(두께=0.7 ㎛)을 형성하였다.

[0102] **[실험예 4: 실시예 3에 따른 전극의 단면]**

[0103] 도 6은 실시예 3에 따른 전극의 단면을 나타낸 것이다.

[0104] 도 6을 참고하면, 실시예 3에 따른 전극은 그 표면에 전기도금으로 박막이 구현되었음을 확인할 수 있다. 이를 통해 유로 판(30)의 유로 패턴과 대응되도록 전기도금법으로 고가의 귀금속 박막을 쉽게 형성할 수 있음을 유추할 수 있다.

[0105] 이상에서 본 발명의 바람직한 실시예들에 대하여 상세하게 설명하였지만 본 발명의 권리 범위는 이에 한정되는

것은 아니고 다음의 청구범위에서 정의하고 있는 본 발명의 기본 개념을 이용한 당업자의 여러 변형 및 개량 형태 또한 본 발명의 권리범위에 속하는 것이다.

부호의 설명

[0106] 10: 제1 전극

10h: 제1 구멍

20: 제2 전극

20h: 제2 구멍

30: 유로 판

32: 유로

32i: 입구

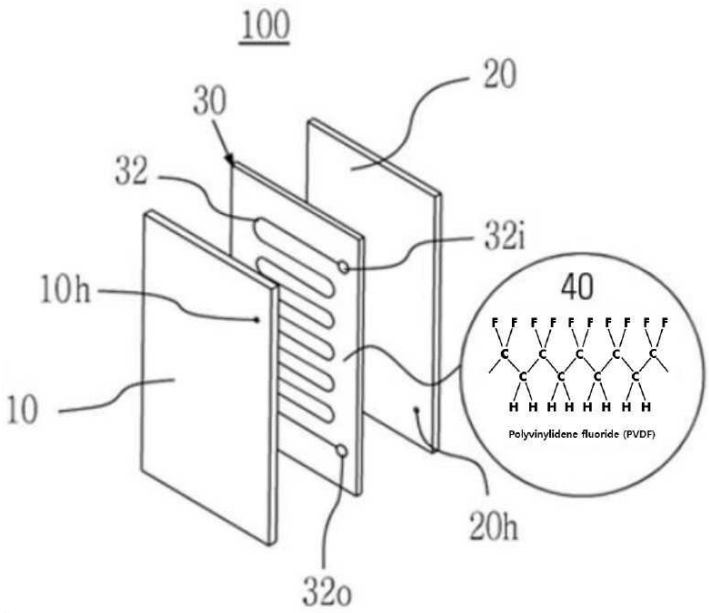
32o: 출구

40: 접착부재

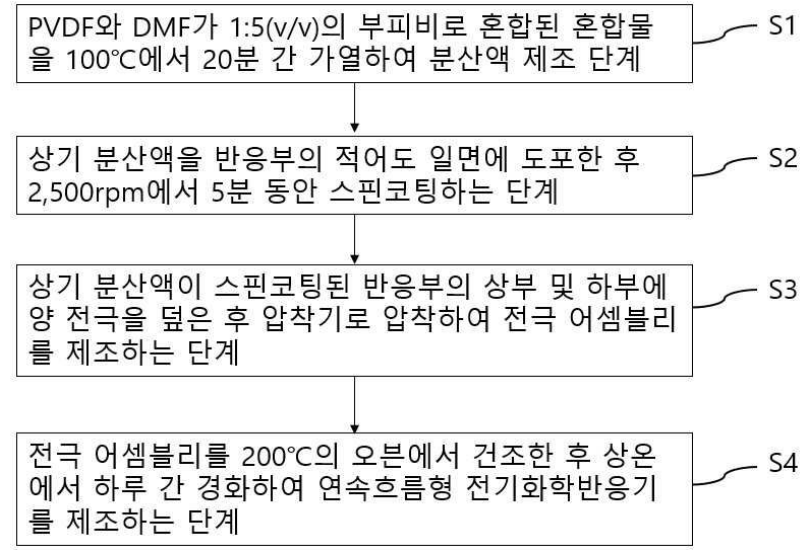
100: 연속흐름형 전기화학반응기

도면

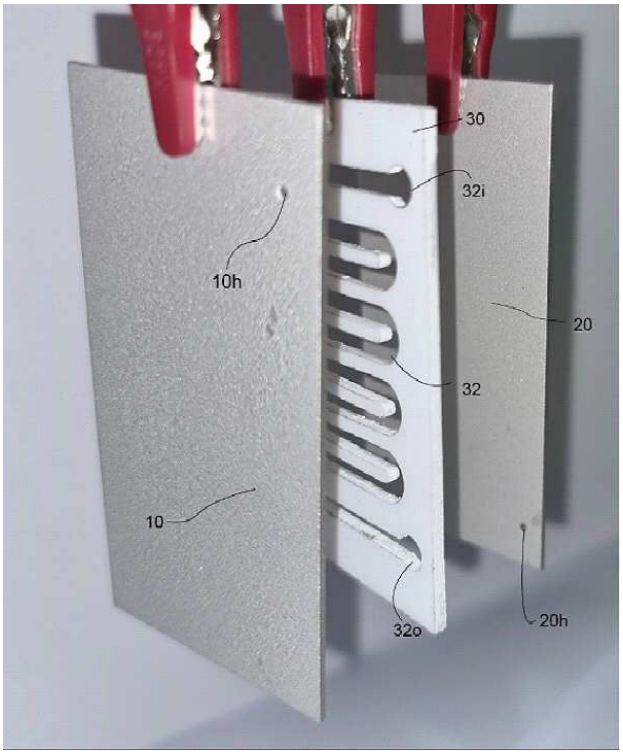
도면1



도면2


PVDF와 DMF가 1:5(v/v)의 부피비로 혼합된 혼합물을 100℃에서 20분 간 가열하여 분산액 제조 단계
S1
상기 분산액을 반응부의 적어도 일면에 도포한 후 2,500rpm에서 5분 동안 스핀코팅하는 단계
S2
상기 분산액이 스핀코팅된 반응부의 상부 및 하부에 양 전극을 덮은 후 압착기로 압착하여 전극 어셈블리를 제조하는 단계
S3
전극 어셈블리를 200℃의 오븐에서 건조한 후 상온에서 하루 간 경화하여 연속흐름형 전기화학반응기를 제조하는 단계
S4

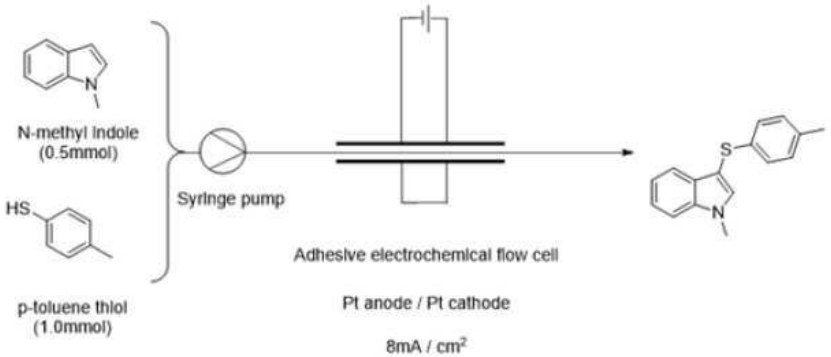
도면3


30
32i
10h
20
32
10
32o
20h

도면4

용매	용출여부	용매	용출여부
Acetonitrile	X	*N,N*-Dimethylformamide	O
Acetone	X	Tetrahydrofuran	X
Water	X	Toluene	X
Ethanol	X	Hexane	X
Methanol	X	*N*-Methyl-2-pyrrolidone	O
Dimethyl sulfoxide	O	Ethyl acetate	X
Dimethyl acetamide	O	Xylene	X
Chloroform	X	Acetic acid	X
Cyclohexane	X	Benzene	X

도면5



Entry	Time (min)	Conversion	Yield (%)
Batch	180	100	68
Continuous flow	3.5	100	71

도면6

