



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2010-0013003
(43) 공개일자 2010년02월09일

(51) Int. Cl.

H01M 4/86 (2006.01) H01M 8/02 (2006.01)

(21) 출원번호 10-2008-0074480

(22) 출원일자 2008년07월30일

심사청구일자 2008년07월30일

(71) 출원인

인하대학교 산학협력단

인천 남구 용현동 253 인하대학교

(72) 발명자

주현철

인천광역시 남구 용현3동 인하대학교 기계공학부
기계공학전공 2N278A

(74) 대리인

특허법인태백

전체 청구항 수 : 총 20 항

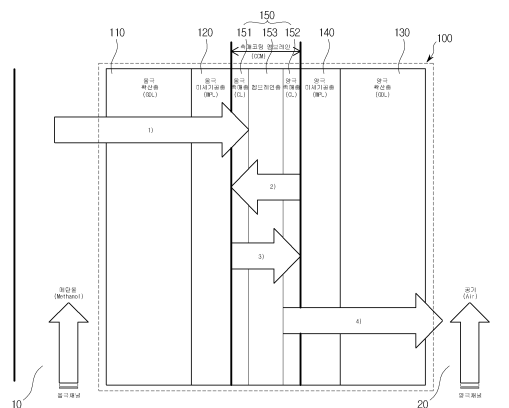
(54) 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 접합체

(57) 요약

본 발명은, 음극채널로부터 메탄올이 유입되는 음극 확산층; 상기 음극 확산층에 접하고 상기 메탄올이 통과되는 음극 미세기공층; 양극채널로부터 산소가 유입되는 양극 확산층; 상기 양극 확산층에 접하고 상기 산소가 통과되는 양극 미세기공층; 및 상기 음극 미세기공층과 양극 미세기공층 사이에 형성되고 상기 메탄올의 산화반응과 상기 산소의 환원반응이 일어나며, 상기 음극 미세기공층에 접하는 음극 촉매층, 상기 양극 미세기공층에 접하는 양극 촉매층, 및 각 촉매층 사이에 형성된 멤브레인층을 구비한 촉매코팅 멤브레인을 포함하며, 상기 음극 확산층, 상기 양극 확산층, 상기 음극 미세기공층 및 상기 양극 미세기공층 중 하나 또는 복수 개의 층에 포함 가능한 PTFE의 중량비를 조절하여 형성된 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 접합체를 제공한다.

개시된 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 접합체에 따르면, PTFE의 중량비 조절을 통해 각 층의 소재 특성을 최적화하여 대상 물질의 전달을 더욱 효과적으로 수행한다. 또한, 기존의 액티브형 및 패시브형 DMFC 시스템의 장점을 통합하여 고농도 메탄올을 연료로 하는 패시브형 DMFC 시스템을 구축할 수 있으며, 기존의 이차전지를 대체할 수 있다.

대표도 - 도1



특허청구의 범위

청구항 1

음극채널로부터 메탄올이 유입되는 음극 확산층;

상기 음극 확산층에 접하고 상기 메탄올이 통과되는 음극 미세기공층;

양극채널로부터 산소가 유입되는 양극 확산층;

상기 양극 확산층에 접하고 상기 산소가 통과되는 양극 미세기공층; 및

상기 음극 미세기공층과 양극 미세기공층 사이에 형성되고 상기 메탄올의 산화반응과 상기 산소의 환원반응이 일어나며, 상기 음극 미세기공층에 접하는 음극 촉매층, 상기 양극 미세기공층에 접하는 양극 촉매층, 및 각 촉매층 사이에 형성된 멤브레인층을 구비한 촉매코팅 멤브레인을 포함하며,

상기 음극 확산층, 상기 양극 확산층, 상기 음극 미세기공층 및 상기 양극 미세기공층 중 하나 또는 복수 개의 층에 포함 가능한 PTFE의 중량비를 조절하여 형성된, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 2

청구항 1에 있어서, 상기 음극 미세기공층은,

전체 100 중량%에 대해, 최소 5 중량%부터 최대 95 중량%의 PTFE를 포함하도록 조성되어 소수성 특성이 조절되고 상기 메탄올의 전달률의 제어가 가능한, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 3

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서, 상기 양극 미세기공층은,

전체 100 중량%에 대해, 최소 5 중량%부터 최대 95 중량%의 PTFE를 포함하도록 조성되어 소수성 특성이 조절되고 상기 환원반응으로 생성된 물의 전달률의 제어가 가능한, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 4

청구항 1에 있어서, 상기 음극 미세기공층 및 양극 미세기공층은,

3차원 공간의 3축 방향 중 하나 또는 복수 개의 방향을 따라 상기 PTFE의 중량% 조성을 달리 적용하여 소수성 특성에 공간적 변화를 부가한, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 5

청구항 1에 있어서, 상기 음극 확산층은,

전체 100 중량%에 대해, 최소 0 중량%부터 최대 70 중량%의 PTFE를 포함하도록 조성된 하나의 단일층 또는 복수 개의 서브층으로 형성되고,

상기 단일층 또는 상기 복수 개의 서브층은, 각각 탄소 종이(Carbon Paper) 또는 탄소 천(Carbon Cloth)으로 형성된, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 6

청구항 5에 있어서, 상기 복수 개의 서브층은,

상기 음극채널에서 상기 음극 미세기공층 측을 향하는 좌우방향으로 적층 형성되고, 각 서브층마다 상기 PTFE의 중량% 조성을 서로 달리하여 상기 음극 미세기공층을 향한 상기 메탄올의 전달률을 제어하는, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 7

청구항 5에 있어서, 상기 각 서브층은,

상기 음극 미세기공층 측을 향하는 서브층일수록 상기 PTFE의 중량%가 감소되는, 고농도 메탄올 연료전지용 막

전극 집합체.

청구항 8

청구항 5에 있어서, 상기 각 서브층은,

상기 음극 미세기공층 측을 향하는 서브층일수록 상기 PTFE의 중량%가 감소되는 형태, 증가되는 형태, 감소와 증가가 반복되는 형태, 또는 감소나 증가 없이 균일한 형태 중 선택된 하나의 형태를 갖도록 제작되는, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 9

청구항 1에 있어서, 상기 양극 확산층은,

전체 100 중량%에 대해, 최소 0 중량%부터 최대 70 중량%의 PTFE를 포함하도록 조성된 하나의 단일층 또는 복수 개의 서브층으로 형성되고,

상기 단일층 또는 상기 복수 개의 서브층은, 각각 탄소 종이(Carbon Paper) 또는 탄소 천(Carbon Cloth)으로 형성된, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 10

청구항 9에 있어서, 상기 복수 개의 서브층은,

상기 양극채널에서 상기 양극 미세기공층 측을 향하는 좌우방향으로 적층 형성되고, 각 서브층마다 상기 PTFE의 중량% 조성을 서로 달리하여 상기 양극채널 측을 향한 상기 물의 제거율을 제어하는, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 11

청구항 10에 있어서, 상기 각 서브층은,

상기 양극 미세기공층 측을 향하는 서브층일수록 상기 PTFE의 중량%가 증가되는, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 12

청구항 10에 있어서, 상기 각 서브층은,

상기 양극 미세기공층 측을 향하는 서브층일수록 상기 PTFE의 중량%가 증가되는 형태, 감소되는 형태, 감소와 증가가 반복되는 형태, 또는 감소나 증가 없이 균일한 형태 중 선택된 하나의 형태를 갖도록 제작되는, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 13

청구항 1에 있어서, 상기 음극 확산층 및 상기 양극 확산층은,

전체 100 중량%에 대해, 최소 0 중량%부터 최대 70 중량%의 PTFE를 포함하도록 조성된 하나의 단일층 또는 복수 개의 서브층으로 형성되고,

상기 단일층 또는 상기 복수 개의 서브층은, 각각 탄소 종이(Carbon Paper) 또는 탄소 천(Carbon Cloth)으로 형성된, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 14

청구항 1에 있어서, 상기 음극 확산층은,

친수성층 및 소수성층으로 구분되되, 상기 친수성층 및 소수성층이 상기 음극채널과 접하며,

상기 친수성층은, 상기 음극채널의 메탄올이 상기 음극 촉매층으로 공급되게 하고,

상기 소수성층은, 상기 음극 촉매층에서 생성된 메탄올산화반응 생성물인 이산화탄소가 상기 음극채널 측으로 빠질 수 있게 하는, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 15

청구항 14에 있어서, 상기 친수성층과 상기 소수성층은,
상하 방향으로 적층 형성되어 상기 음극 촉매층과 측면이 접하는, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 16

청구항 14 또는 청구항 15에 있어서, 상기 친수성층과 상기 소수성층은,
각각의 두께 조절이 가능한, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 17

청구항 14 또는 청구항 15에 있어서,
상기 친수성층은, 상기 음극 촉매층에서 생성된 메탄올산화반응 생성물에 해당되는 이산화탄소가 상기 음극채널
측으로 일부 빠질 수 있게 하고,
상기 소수성층은, 상기 음극채널의 메탄올이 상기 음극 촉매층으로 일부 공급되게 하는, 고농도 메탄올 연료전
지용 막 전극 집합체.

청구항 18

청구항 14 또는 청구항 15에 있어서, 상기 친수성층 및 상기 소수성층은,
전체 100 중량%에 대해, 각각의 친수성과 소수성을 위한 일정 중량%의 PTFE를 포함하되,
상기 친수성층과 상기 소수성층에 포함되는 상기 PTFE의 중량% 차이는, 최대 70 중량%에서 최소 0.1 중량%의 차
이를 갖는, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 19

청구항 1에 있어서, 상기 음극 확산층은,
상기 막 전극 집합체의 전후 방향에 대해, 상기 PTFE의 중량% 조성을 달리 적용하여 소수성 특성에 공간적 변화
를 부가하여 상기 메탄올의 전달율을 제어하는, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체.

청구항 20

청구항 19에 있어서, 상기 PTFE의 중량% 조성은,
상기 전후 방향에 대해 0 중량% 내지 70 중량%의 범위로 각각 적용되는, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집
합체.

명 세 서

발명의 상세한 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체에 관한 것으로서, 보다 상세하게는 직접 메탄올 연료전지 (DMFC; Direct Methanol Fuel Cell)용 막 전극 집합체에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 휴대용 직접 메탄올 연료전지(Direct Methanol Fuel Cell; DMFC) 시스템 연구의 핵심요소는, 기존 휴대용기기의 에너지원으로 이용되는 리튬이온전지(이차전지)의 에너지 밀도(350Wh/L)를 증가하는 성능의 시스템을 개발하는 데 있다. 이러한 DMFC 시스템의 크기를 줄이면서 그 성능의 신뢰성을 확보하기 위하여 그동안 많은 연구가 진행되어 왔다. 지금까지 개발된 DMFC 시스템의 형태는 크게 액티브(Active)형과 패시브(Passive)형으로 구분될 수 있다.

[0003] 상기 액티브형 DMFC 시스템은 고농도 메탄올을 연료탱크에 탑재하므로 단위출력당 연료탱크부피를 최소화할 수

있는 장점이 있다. 그런데, 이러한 액티브형 DMFC 시스템은 공기극(cathode) 측에서 전기화학반응에 의해 생성된 물을 회수하여 연료극(anode)쪽의 메탄올을 희석하기 위하여, 전지 내부에 별도로 보조기(메탄올 수용액 순환 펌프, 공기 공급용 블로워, 메탄올 수용액 농도 제어용 센서 등)를 탑재하여야 하므로, 시스템의 부피가 커지는 단점이 있다.

[0004] 이와는 달리, 상기 패시브형 DMFC 시스템은, 펌프나 팬 등의 보조기기가 별도로 사용되지 않아 시스템전지의 단순화 및 소형화에 유리한 이점이 있다. 그런데, 이러한 패시브형 DMFC 시스템은, 물로 희석된 10~20% 범위의 메탄올을 연료로 공급하여 사용하므로, 낮은 메탄올 농도에 기인하여, 연료탱크의 단위부피당 발전가능한 전기 에너지가 작다는 단점이 있다.

[0005] 이러한 이유에도 불구하고, 국내 및 해외의 주요기업이나 연구기관들은 이러한 두 형태의 DMFC 시스템을 기본으로 한 원천소재 및 부품(촉매, 멤브레인(Membrane), 확산층, 스택(stack), BOP(Balance of Plant) 시스템 부품 등)의 개발에 주력하고 있다. 하지만, 상기 개발에 대해 지금까지 진행되어온 DMFC 연구의 기본틀(패시브형 DMFC:저농도 메탄올, 액티브형 DMFC:고농도 메탄올)을 그대로 유지한다면, 액티브형 및 패시브형 DMFC 시스템의 각각의 장단점으로 인해, 리튬이온전지를 능가하는 휴대용 DMFC 시스템의 개발은 여전히 어려울 것으로 판단된다.

발명의 내용

해결 하고자하는 과제

[0006] 본 발명은, 기존의 액티브형 및 패시브형 DMFC 시스템의 장점을 통합하여 고농도의 메탄올을 이용한 패시브형 DMFC용인, 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체를 제공하는데 목적이 있다.

과제 해결수단

[0007] 본 발명은, 음극채널로부터 메탄올이 유입되는 음극 확산층; 상기 음극 확산층에 접하고 상기 메탄올이 통과되는 음극 미세기공층; 양극채널로부터 산소가 유입되는 양극 확산층; 상기 양극 확산층에 접하고 상기 산소가 통과되는 양극 미세기공층; 및 상기 음극 미세기공층과 양극 미세기공층 사이에 형성되고 상기 메탄올의 산화반응과 상기 산소의 환원반응이 일어나며, 상기 음극 미세기공층에 접하는 음극 촉매층, 상기 양극 미세기공층에 접하는 양극 촉매층, 및 각 촉매층 사이에 형성된 멤브레인층을 구비한 촉매코팅 멤브레인을 포함하며, 상기 음극 확산층, 상기 양극 확산층, 상기 음극 미세기공층 및 상기 양극 미세기공층 중 하나 또는 복수 개의 층에 포함 가능한 PTFE의 중량비를 조절하여 형성된 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체를 제공한다.

[0008] 또한, 상기 음극 미세기공층은, 전체 100 중량%에 대해, 최소 5 중량%부터 최대 95 중량%의 PTFE를 포함하도록 조성되어 소수성 특성이 조절되고 상기 메탄올의 전달률의 제어가 가능할 수 있다. 또한, 상기 양극 미세기공층은, 전체 100 중량%에 대해, 최소 5 중량%부터 최대 95 중량%의 PTFE를 포함하도록 조성되어 소수성 특성이 조절되고 상기 환원반응으로 생성된 물의 전달률의 제어가 가능할 수 있다.

[0009] 한편, 상기 음극 확산층 및 상기 양극 확산층은, 전체 100 중량%에 대해, 최소 0 중량%부터 최대 70 중량%의 PTFE를 포함하도록 조성된 하나의 단일층 또는 복수 개의 서브층으로 형성되고, 상기 단일층 또는 상기 복수 개의 서브층은, 각각 탄소 종이(Carbon Paper) 또는 탄소 천(Carbon Cloth)으로 형성될 수 있다.

[0010] 그리고, 상기 음극 확산층은, 친수성층 및 소수성층으로 구분되며, 상기 친수성층 및 소수성층이 상기 음극채널과 접하며, 상기 친수성층은, 상기 음극채널의 메탄올이 상기 음극 촉매층으로 공급되게 하고, 상기 소수성층은, 상기 음극 촉매층에서 생성된 메탄올산화반응 생성물인 이산화탄소가 상기 음극채널 측으로 빠질 수 있게 할 수 있다. 여기서, 상기 친수성층 및 상기 소수성층은, 전체 100 중량%에 대해, 각각의 친수성과 소수성을 위한 일정 중량%의 PTFE를 포함하되, 상기 친수성층과 상기 소수성층에 포함되는 상기 PTFE의 중량% 차이는, 최대 70 중량%에서 최소 0.1 중량%의 차이를 가질 수 있다.

[0011] 한편, 상기 음극 확산층은, 상기 막 전극 집합체의 전후 방향에 대해, 상기 PTFE의 중량% 조성을 달리 적용하여 소수성 특성에 공간적 변화를 부가하여 상기 메탄올의 전달율을 제어할 수 있다.

효과

[0012] 본 발명에 따른 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체에 따르면, 음극 확산층, 양극 확산층, 음극 미세기공층 및 양극 미세기공층에 포함 가능한 PTFE의 중량비를 각각 조절하여, 각 층의 소재 특성을 최적화함은 물론이

며 대상 물질의 전달을 더욱 효과적으로 수행한다. 또한, 상기 막 전극 집합체의 소재 특성의 최적화를 통해 기존의 액티브형 및 패시브형 DMFC 시스템의 장점을 통합하여, 별도의 보조기기(팬, 펌프 등) 없이도 고농도 메탄올을 연료로 하는 패시브형 DMFC 시스템을 구축할 수 있다. 이에 따라, 상기 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체는 기존의 이차전지(리튬이온전지)를 대체할 수 있을 뿐 아니라, 휴대용 전원으로서의 DMFC의 상품화를 앞당기는 데 결정적인 역할을 하는 핵심기술로 작용될 수 있다.

발명의 실시를 위한 구체적인 내용

- [0013] 도 1은 본 발명의 실시예에 따른 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체의 평단면도이다. 도 1을 참조하면, 상기 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체(100)는, 음극 확산층(110), 음극 미세기공층(120), 양극 확산층(130), 양극 미세기공층(140) 및 촉매코팅 멤브레인(150)을 포함한다. 이러한 상기 막 전극 집합체(100)는 직접 메탄올 연료전지(Direct Methanol Fuel Cell; DMFC) 시스템을 위한 것이다.
- [0014] 상기 막 전극 집합체(100)의 상세한 설명에 앞서, 각 확산층(GDL; Gas Diffusion Layer) 및 미세기공층(MPL; Micro Porous Layer)에 관하여 간단히 설명하면 다음과 같다. 상기 음극 및 양극의 확산층(110, 130)은, 액체연료나 기체 등의 반응물이 촉매코팅 멤브레인(150) 내의 각 촉매층(151, 152) 부분으로 고르게 전달되도록 한다. 또한, 각 확산층(110, 130)에 접하는 상기 음극 및 양극의 미세기공층(120, 140)은, 상기 액체연료나 기체 등의 반응물에 대한 전달 및 확산 효율을 더욱더 증가시킨다.
- [0015] 상기 확산층(110, 130)과 미세기공층(120, 140)은, 사용 소재(Material), 기공 크기(Pore size), 가스 투과성(Gas Permeability), 공극률(Porosity), 습윤성(Wettability) 등에 의해 특성 조절이 가능하다. 이러한 상기 확산층(110, 130) 및 미세기공층(120, 140)은 기존에 공지된 다양한 구성 또는 재료 중 선택적으로 채용 가능한 부분이다.
- [0016] 막 전극 집합체(100)의 각각의 구성을 살펴보면, 먼저 상기 음극 확산층(110)은 음극채널(10)로부터 연료에 해당하는 메탄올(Methanol; CH₃OH)이 유입되는 부분이다. 그리고, 상기 음극 미세기공층(120)은 상기 음극 확산층(110)에 접하여 위치하고 상기 메탄올이 통과된다.
- [0017] 상기 양극 확산층(130)은 상기 촉매코팅 멤브레인(150)을 기준으로 상기 음극 확산층(110)에 대향하여 위치하고, 양극채널(20)로부터 공기가 유입된다. 물론, 상기 공기 내에는 산소(O₂)가 포함되어 있다. 그리고, 상기 양극 미세기공층(140)은 상기 양극 확산층(130)에 접하여 위치하고 상기 산소(O₂)가 통과 가능하다.
- [0018] 상기 촉매코팅 멤브레인(150)은 CCM(Catalyst Coated Membrane)으로서, 상기 음극 미세기공층(120)과 양극 미세기공층(140) 사이에 형성되고, 상기 메탄올의 산화반응과 상기 산소의 환원반응이 일어나는 부분이다. 더 상세하게는, 상기 촉매코팅 멤브레인(150)은 상기 음극 미세기공층(120)에 접하는 음극 촉매층(151)과, 상기 양극 미세기공층(140)에 접하는 양극 촉매층(152), 그리고 각 촉매층(151, 152) 사이에 형성된 멤브레인층(153)을 구비한다.
- [0019] 상기 촉매코팅 멤브레인(150)을 구성하는 각 촉매층(151, 152) 및 멤브레인층(153)은 기존에 공지된 다양한 구성 또는 재료 중 선택적으로 채용 가능함은 자명하다. 여기서, 상기 촉매층(151, 152)은 CL(Catalyst Layer)을 의미한다. 상기 음극 촉매층(151)에서는 아래의 화학식 1과 같은 메탄올의 산화반응이 일어나고, 상기 양극 촉매층(152)에서는 아래의 화학식 2와 같은 산소의 환원반응이 일어난다.
- [0020] [화학식 1] : 메탄올 산화반응
- [0021]
$$CH_3OH + H_2O \rightarrow 6H^+ + 6e^- + CO_2 \quad \text{Anode}$$
- [0022] [화학식 2] : 산소 환원반응
- [0023]
$$6H^+ + 6e^- + \frac{3}{2} O_2 \rightarrow 3H_2O \quad \text{Cathode}$$
- [0024] 여기서, 상기 DMFC 시스템의 성능 및 내구성 향상을 위한 물질전달 제어메카니즘을 위해서는, DMFC 시스템 내의 전기화학 반응물의 원활한 공급과, 그 생성물의 효과적인 제거를 기본으로 한다. 상기 화학식 1 및 화학식 2를 참조하면, 상기 메탄올의 산화반응을 용이하게 하기 위해서는 메탄올 1몰(mole)당 물(H₂O) 1몰이 필요하다. 반

면, 상기 산소의 환원반응으로 인해, 3몰의 물(H_2O)이 양극(cathode) 측에서 생성된다.

- [0025] 즉, DMFC 시스템의 전기화학반응은, 음극(anode) 측에서의 물 부족(water depletion) 현상과 양극(cathode) 측에서의 물 과잉(water flooding) 현상을 초래하는 근본적인 문제를 내포하고 있다. 더욱이, 양이온(H^+)이 멤브레인층(153)을 통하여 양극(cathode) 측으로 이동하는 동안, 물(H_2O)을 이끌고 나아가는 전기 삼투 항력(Electro-Osmotic Drag; EOD) 효과에 의해, 음극(anode) 측에서의 물 부족 현상과 양극(cathode) 측에서의 물 과잉 현상은 점점 더 심각해지게 된다.
- [0026] 한편, 음극(anode) 유로채널(flow channel)을 통해 공급되는 메탄올은 상기 음극 촉매층(151)에 도달해야 함은 자명하다. 반면, 상기 공급되는 메탄올이 상기 멤브레인층(153)을 통과하여 양극(cathode) 측으로 흐르게 되는 크로스오버(crossover) 현상은 억제되어야 한다. 이러한 상기 메탄올의 크로스오버 현상은 혼합 전위(mixed-potential) 효과에 기인한 양극(cathode) 측의 과전위(overpotential)을 증가시키고, 메탄올의 누수에 의한 연료 효율(fuel efficiency)을 감소시키는 문제점이 있다.
- [0027] 상기 막 전극 집합체(100)는, 기존의 DMFC 연구의 기본 틀을 벗어나, 고농도의 메탄올을 패시브형 DMFC 시스템에 적용한 것으로서, 외부에 별도로 펌프 혹은 팬과 같은 보조기기를 탑재할 필요가 없으며, 내부적으로 적절한 컴포넌트 디자인을 통해 물질전달을 알맞게 제어할 수 있다. 이러한 기존의 DMFC 연구와 차별된 '고농도 메탄올'을 연료로 하는 '패시브형' DMFC 시스템을 위한, 상기 막 전극 집합체(100)의 전략에 관하여, 도 1의 1)~4)번 화살표를 참조하면 아래와 같다.
- [0028] 1): 음극(anode) 측에서의 메탄올 전달률(transfer rate)을 강화한다. 이 과정은 액체상태의 메탄올을 기화시키거나 확산층(110)의 습윤성(wetting characteristics)을 제어하는 과정을 통해 가능하다. 이러한 습윤성 제어는 상기 확산층(110)에 포함 가능한 PTFE(폴리테트라플루오로에틸렌)의 중량비(함유량) 조절을 통해 가능하다. 예를 들면, 상기 확산층(110)에 PTFE가 적게 포함될수록 소수성 특성이 약해지고 친수성 특성이 강해진다.
- [0029] 2): 양극(cathode) 측의 촉매층(152)에서 산소환원반응(화학식 2)에 의해 생성된 물(H_2O)을, 상기 멤브레인층(153)을 통해 음극(anode) 측으로 보내는 멤브레인 물 전송률(membrane water transfer rate)을 강화한다. 이 과정은 음극 촉매층(151)에서의 메탄올 산화반응(화학식 1)을 용이하게 하며, 외부적으로 메탄올을 회석시키는 과정 없이 원활한 메탄올 산화반응을 가능하게 한다.
- [0030] 3): 멤브레인층(153)을 통하여 메탄올이 양극(cathode) 측으로 크로스오버(crossover)되는 양을 줄임에 따라, 메탄올의 누수를 최소화하고 연료 효율을 증가시킨다.
- [0031] 4): 양극(cathode) 측 확산층(130)을 통한 물 전달률(transfer rate)을 강화한다. 이 과정은 과잉의 물에 의한 플러딩(flooding) 현상을 줄여주는 효과가 있어 양극(cathode) 측 확산층(130)을 통한 산소의 전달을 용이하게 한다.
- [0032] 이상과 같은 네 가지 형태로 물질전달을 통제하기 위하여, 상기 확산층(130, 140), 미세기공층(120, 140) 등의 DMFC의 핵심 컴포넌트들의 디자인과 소재(素材)가 최적화되는 과정을 거친다.
- [0033] 더 상세하게는, 상기 막 전극 집합체(100)는, 상기 음극 확산층(110), 양극 확산층(130), 음극 미세기공층(120) 및 양극 미세기공층(140) 중 하나 또는 복수 개의 층에 포함 가능한 PTFE(폴리테트라플루오로에틸렌)의 중량비(함유량)를 조절하여, 조성 가능하다. 이러한 상기 PTFE의 중량비 조절을 통해, 각 층에 대한 소재 특성을 최적화함으로써 대상 물질의 전달을 더욱 효율적으로 수행할 수 있게 한다.
- [0034] 그 예로서 먼저, 상기 음극 미세기공층(120)은, 전체 100 중량%에 대해, 최소 5 중량%부터 최대 95 중량%의 PTFE를 포함하도록 조성되어, 소수성(Hydrophobic) 특성이 조절되고 상기 메탄올의 전달률의 제어가 가능하다. 즉, 이러한 경우, 상기 음극(anode) 측에서 음극 촉매층(151)으로의 메탄올 전달률은 다소 감소되지만, 상기 메탄올이 상기 멤브레인층(153)을 통해 양극(cathode) 측으로 크로스오버되는 양을 줄일 수 있다. 따라서, 이는 메탄올의 누수를 감소시키고 연료 효율을 증가시켜, DMFC 성능을 오히려 증가시킬 수 있는 요인이 된다.
- [0035] 상기 양극 미세기공층(140) 또한, 전체 100 중량%에 대해, 최소 5 중량%부터 최대 95 중량%를 포함하도록 조성되어 소수성 특성이 조절되고 상기 환원반응으로 생성된 물의 전달률의 제어가 가능하다. 이러한 경우, 상기 메탄올이 상기 양극(cathode) 측으로 크로스오버되는 양을 줄일 수 있음은 물론이며, 상기 양극 촉매층(152)에서 생성된 물이 상기 양극 미세기공층(140)을 통해 양극(cathode) 확산층 측으로 이동되는 것을 최소화하여 플러딩(flooding) 현상을 방지하고, 그 반대인 상기 음극(anode) 측으로 공급되게 할 수 있어, 음극(anode) 측에서 발

생하는 상기 물 부족 현상을 해결할 수 있다. 이상과 같이, 상기 음극 미세기공층(120)과 양극 미세기공층(140)은, 상기한 PTFE 중량비 조절을 통해 고도의 소수성 특성을 갖도록 제작 가능하다.

- [0036] 다공성 미디어(porous media)에 대하여 2상 이론(two-phase theory)을 참고하면, 일반적으로 소수성의 확산층 내의 액체(물 또는 메탄올)의 전달률(transfer rate)은, 소수성이 감소하는 방향으로 증가하게 된다. 즉, 소수성이 감소할수록 상기 액체의 전달률은 증가하게 된다.
- [0037] 상기 막 전극 집합체(100)는 상기 메탄올 및 물 전달을 효율적으로 제어하기 위해, 각 미세기공층(120,140)의 소수성의 공간적 변화(spatial variation)를 PTFE 요소에 대한 양의 변화를 통해 부가할 수 있다. 더 상세하게는, 상기 음극 미세기공층(120) 및 양극 미세기공층(140)은, 각 미세기공층을 이루는 3차원 공간상의 3축 방향 중, 하나 또는 복수 개의 방향을 따라 상기 PTFE의 중량% 조성을 달리 적용하여 소수성 특성에 공간적 변화를 부가할 수 있다. 즉, 이러한 상기 미세기공층(120,140)의 소수성은, 3차원적으로 세 방향을 통해 모두 변할 수 있도록 제작되거나, 두 방향 또는 한 방향에 대해서만 변화를 갖도록 제작될 수 있고, 또한 각 방향에 대해 변화가 없이 균일하도록 제작 가능하다.
- [0038] 물론, 상기 막 전극 집합체(100)는, 상기 메탄올 및 물 전달을 효율적으로 제어하기 위해, 상기 미세기공층(120,140)과 유사한 방법으로, 각 확산층(110,130)의 소수성의 공간적 변화(spatial variation)를, PTFE 요소에 대한 양의 변화를 통해 부가할 수 있다. 이하에서는 도 2 내지 도 4를 참조로 하여, 상술한 확산층(110,130)의 PTFE 함유량 변화에 관하여, 보다 상세히 설명하고자 한다.
- [0039] 도 2는 상기 막 전극 집합체(200)의 좌우방향(x)에 대해, 음극 및 양극 확산층(210,230)을 형성한 각 서브층(1a~1d, 2a~2d)의 PTFE 조성비 변화를 나타낸다. 이에 따르면, 상기 음극 확산층(210)에서의 메탄올 공급률과 양극 확산층(230)에서의 물 제거율을 각각 증가시킬 수 있다.
- [0040] 먼저, 상기 음극 확산층(210)은, 전체 100 중량%에 대해, 최소 0 중량%부터 최대 70 중량%의 PTFE를 포함하도록 조성된, 하나의 단일층 또는 복수 개의 서브층(1a~1d, ...)으로 형성 가능하다. 여기서, 상기 단일층 또는 상기 복수 개의 서브층은, 각각 탄소 종이(Carbon Paper) 또는 탄소 천(Carbon Cloth)으로 형성된다.
- [0041] 여기서, 상기 음극 확산층(210)이 상기 단일층으로 형성된 경우, 일정 중량%의 PTFE를 포함하도록 구성 가능하다. 그리고, 상기 음극 확산층(210)이 복수 개의 서브층(1a~1d, ...)으로 형성된 경우, 상기 복수 개의 서브층(1a~1d, ...)은, 상기 음극채널(10)에서 상기 음극 미세기공층(120) 측을 향하는 좌우방향으로 적층 형성된다.
- [0042] 여기서, 상기 각 서브층(1a~1d, ...)마다 상기 PTFE의 중량% 조성을 서로 달리하는 경우, 상기 음극 미세기공층(120)을 향한 상기 메탄올의 전달률을 더욱 효과적으로 제어할 수 있게 된다. 예를 들면, 도 2의 그래프와 같이, 상기 각 서브층(1a~1d, ...)은 상기 음극 미세기공층(120) 측을 향하는 서브층일수록 상기 PTFE의 중량%가 감소되도록 제작할 수 있다. 이러한 경우, 서브층 1d에서 서브층 1a를 향할수록 소수성 특성이 저하되고, 음극 촉매층(151)으로의 메탄올 공급률을 증가시킬 수 있다.
- [0043] 물론, 상기 음극 확산층(210)은, 상기 음극 미세기공층(120)을 향할수록 PTFE의 중량%가 점차로 감소되는 구성 이외에도, 상기 PTFE의 중량%가 점차로 증가되는 형태, 감소나 증가가 반복되는 형태, 혹은 감소나 증가 없이 PTFE의 중량%가 균일한 형태로 다양하게 제작 가능하다. 즉, 상기 음극 확산층(110)은 상기한 기술범주 내에서 상기 메탄올의 전달률을 증가시킬 수 있는 어떠한 변경 구성도 적용 가능함은 자명하다.
- [0044] 다음으로, 상기 양극 확산층(230)은, 전체 100 중량%에 대해, 최소 0 중량%부터 최대 70 중량%의 PTFE를 포함하도록 조성된 하나의 단일층 또는 복수 개의 서브층으로 형성된다. 여기서, 또한 상기 단일층 또는 상기 복수 개의 서브층은, 각각 탄소 종이(Carbon Paper) 또는 탄소 천(Carbon Cloth)으로 형성된다.
- [0045] 여기서, 상기 양극 확산층(230)이 상기 단일층으로 형성된 경우, 일정 중량%의 PTFE를 포함하도록 구성 가능하다. 그리고, 상기 양극 확산층(230)이 복수 개의 서브층(2a~2d, ...)으로 형성된 경우, 상기 복수 개의 서브층(2a~2d, ...)은, 상기 양극채널(20)에서 상기 양극 미세기공층(140) 측을 향하는 좌우방향으로 적층 형성된다.
- [0046] 여기서, 상기 각 서브층(2a~2d, ...)마다 상기 PTFE의 중량% 조성을 서로 달리하는 경우, 상기 양극채널(20) 측을 향한 상기 물의 제거율을 더욱 효과적으로 제어할 수 있게 된다. 예를 들면, 도 2의 그래프와 같이, 상기 각 서브층(2a~2d, ...)은 상기 양극 미세기공층(140) 측을 향하는 서브층일수록 상기 PTFE의 중량%가 증가되도록 제작할 수 있다. 이러한 경우, 서브층 2a에서 서브층 2d를 향할수록 소수성 특성이 감소되고, 상기 양극채널(20) 측을 향한 상기 물의 제거율을 증가시킬 수 있다.
- [0047] 물론, 상기 양극 확산층(230)은, 상기 양극 미세기공층(140)을 향할수록 PTFE의 중량%가 점차로 증가되는 구성

이외에도, 도 3의 그래프를 참조하면, 상기 PTFE의 중량%가 점차로 감소되는 형태, 감소나 증가가 반복되는 형태, 혹은 감소나 증가 없이 PTFE의 중량%가 균일한 형태로 다양하게 제작 가능하다. 즉, 상기 양극 확산층(230)은 상기한 기술범주 내에서 상기 물의 제거율을 증가시킬 수 있는 어떠한 변경 구성도 적용 가능함은 자명하다.

[0048] 한편, 도 4는 음극 확산층(110)에 대한 다른 실시예로서, 막 전극 집합체(300)의 상하방향(z)에 대해, 음극 확산층(310)을 형성한, 소수성층(312)과 친수성층(311)을 나타낸 것이다.

[0049] 도 4를 참조하면, 상기 음극 확산층(310)은, 상기 친수성층(311) 및 소수성층(312)으로 구분되며, 상기 친수성층(311) 및 소수성층(312)의 측면이 상기 음극채널(10)과 일부(혹은 전부) 접하도록 구성 가능하다. 즉, 상기 친수성층(311)과 상기 소수성층(312)은, 상하 방향(z)으로 반복 적층 형성되어 상기 음극 촉매층(151)과 측면이 일부 또는 전부 접하는 구조를 갖는다. 참고로, 도 4에서 채널폭(channel width)은 메탄올이 유입되는 채널의 폭이며, 이러한 채널은 상하방향(z)으로 일정간격 복수 개로 형성 가능하다. 도 4를 참조하면, 메탄올이 유입되는 유로를 형성하는 흑연(graphite) 재질 등의 분리판(11)을 포함한다.

[0050] 이상과 같이, z축방향으로의 소수성 변화는, 음극 확산층(310)의 경우에만 해당된다. 다시 말해서, 상기 음극 확산층(310)은 PTFE 함유량이 적거나 없어 상대적으로 친수성 부분인 친수성층(311)과, PTFE 함유량이 상기 친수성층(311)보다 상대적으로 많은 고도의 소수성을 갖는 소수성층(312)으로 구분된다.

[0051] 여기서, 상대적 친수성층(311)은, 상기 음극채널(10)의 메탄올이 상기 촉매코팅 멤브레인(150)의 음극 촉매층(151)으로 공급되게 하고, 상대적 소수성층(312)은, 상기 촉매코팅 멤브레인(150)의 음극 촉매층(151)에서 생성된 메탄올산화반응 생성물인 이산화탄소(CO_2)가 상기 음극채널(10) 측으로 빠질 수 있게 한다. 물론, 상기 친수성층(311)과 상기 소수성층(312)은, 각각의 두께 조절이 가능한데, 이를 통해 상기 메탄올의 공급 효율 및 이산화탄소의 제거 효율을 제어할 수 있다.

[0052] 한편, 상기 친수성층(311)은, 그 물리적 현상에 따라, 상기 음극 촉매층(151)에서 생성된 상기 이산화탄소(CO_2)가 상기 음극채널(10) 측으로 일부 빠질 수 있도록 한다. 상기 소수성층(312) 또한, 그 물리적 현상에 따라 상기 음극채널(10)의 메탄올이 상기 음극 촉매층(151)으로 일부 공급되게 한다.

[0053] 앞서 상술한 바와 같이, 상기 친수성층(311) 및 상기 소수성층(312)은, 전체 100 중량%에 대해, 각각의 친수성과 소수성을 위한 일정 중량%의 PTFE를 포함하며, 상기 친수성층(311)과 상기 소수성층(312)에 포함되는 상기 PTFE의 중량% 차이는, 최대 70 중량%에서 최소 0.1 중량%의 차이를 가질 수 있다. 예를 들어, 친수성층(311)은 0 중량%부터 69.90 중량%의 PTFE를 포함할 수 있고, 상기 소수성층(312)은 최소 0.1 중량%부터 최대 70 중량%의 PTFE를 포함할 수 있다. 즉, 이러한 범위 내에서 상기 친수성층(311)과 소수성층(312) 간의 PTFE 함유율 차이를, 최대 70 중량%에서 최소 0.1 중량% 범위로 조절할 수 있다.

[0054] 한편, 도 5는 음극 확산층(110)에 대한 또 다른 실시예로서, 막 전극 집합체(400)의 전후방향(y)에 대해, 음극 확산층(410)의 PTFE 조성비 변화를 나타낸 것이다.

[0055] 도 5를 참조하면, 상기 음극 확산층(410)은, 상기 막 전극 집합체(400)의 전후 방향(y)에 대해, 상기 PTFE의 중량% 조성을 달리 적용하여 소수성 특성에 공간적 변화를 부가하여 상기 메탄올의 전달율을 제어한다. 여기서, 상기 PTFE의 중량% 조성은, 상기 전후 방향(y)에 대해 0 중량% 내지 70 중량%의 범위로 각각 적용 가능하다. 참고로, 도 5에서는 음극 확산층(410)의 PTFE 중량%가 음극채널(10)의 하류방향으로 갈수록 감소하는 것으로 예시되어 있으나, 하류방향으로 변화할 수 있는 모든 경우(감소, 증가, 감소와 증가의 반복, 균일 등)를 포함함은 자명하다.

[0056] 이상과 같이, 전후 방향(y)으로의 소수성 변화는 음극 확산층(410)의 경우에만 해당되며, 상기한 구성은, 상기 음극채널(10)에서 공급받는 메탄올용액의 상기 메탄올 산화반응[화학식 1]에 의한 메탄올 소모로 인해 생기는 상기 음극채널(10)의 상류에서 하류방향으로 메탄올 농도변화가 클 때, 이러한 조건하에서 메탄올농도 변화를 유도하여, 그에 따른 메탄올 전달률을 최대화하고 메탄올의 크로스오버를 적절히 통제하기 위함이다.

[0057] 이상과 같이, 상기 막 전극 집합체(100,200,300,400)는 그 구성요소인 음극 확산층(110), 양극 확산층(130), 음극 미세기공층(120) 및 양극 미세기공층(140) 중 선택된 하나 또는 복수 개의 층에 포함 가능한 PTFE의 중량비를 조절하여, 각 층의 소재 특성을 최적화함은 물론이며 대상 물질의 전달을 더욱 효과적으로 수행한다. 또한, 상기 막 전극 집합체(100,200,300,400)의 상기 소재 특성의 최적화를 통해 기존의 액티브형 및 패시브형 DMFC 시스템의 장점을 통합하여, 별도의 보조기기(팬, 펌프 등) 없이도 고농도 메탄올을 연료로 하는 패시브형

DMFC 시스템을 구축할 수 있다.

[0058] 이에 따라, 상기 막 전극 집합체(100,200,300,400)는 기존의 이차전지(리튬이온전지)를 대체할 수 있을 뿐 아니라, 휴대용 전원으로서의 DMFC의 상품화를 앞당기는 데 결정적인 역할을 하는 핵심기술로 작용될 것으로 판단된다. 예를 들면, 본 발명은 휴대용 기기 중에서도 특히 3C분야인 컴퓨터(Computer, notebook), 캠코더(Camcorder), 셀룰러폰(Cellular phone)에 충분히 활용 가능하며, 기타 다양한 전지로 이용 가능하다.

[0059] 본 발명은 도면에 도시된 실시예를 참고로 설명되었으나 이는 예시적인 것에 불과하며, 본 기술 분야의 통상의 지식을 가진 자라면 이로부터 다양한 변형 및 균등한 다른 실시예가 가능하다는 점을 이해할 것이다. 따라서, 본 발명의 진정한 기술적 보호 범위는 첨부된 특허청구범위의 기술적 사상에 의하여 정해져야 할 것이다.

도면의 간단한 설명

[0060] 도 1은 본 발명의 실시예에 따른 고농도 메탄올 연료전지용 막 전극 집합체의 평단면도,

[0061] 도 2는 도 1에 도시된 막 전극 집합체의 좌우방향에 대해, 음극 및 양극 확산층을 형성한 각 서브층의 PTFE 조성비 변화를 나타내는 평단면도,

[0062] 도 3은 도 2에 도시된 PTFE 조성비의 변화의 다른 예시를 나타내는 도면,

[0063] 도 4는 도 1에 도시된 막 전극 집합체의 상하방향에 대해, 음극 확산층을 형성한 소수성층과 친수성층을 나타내는 평단면도,

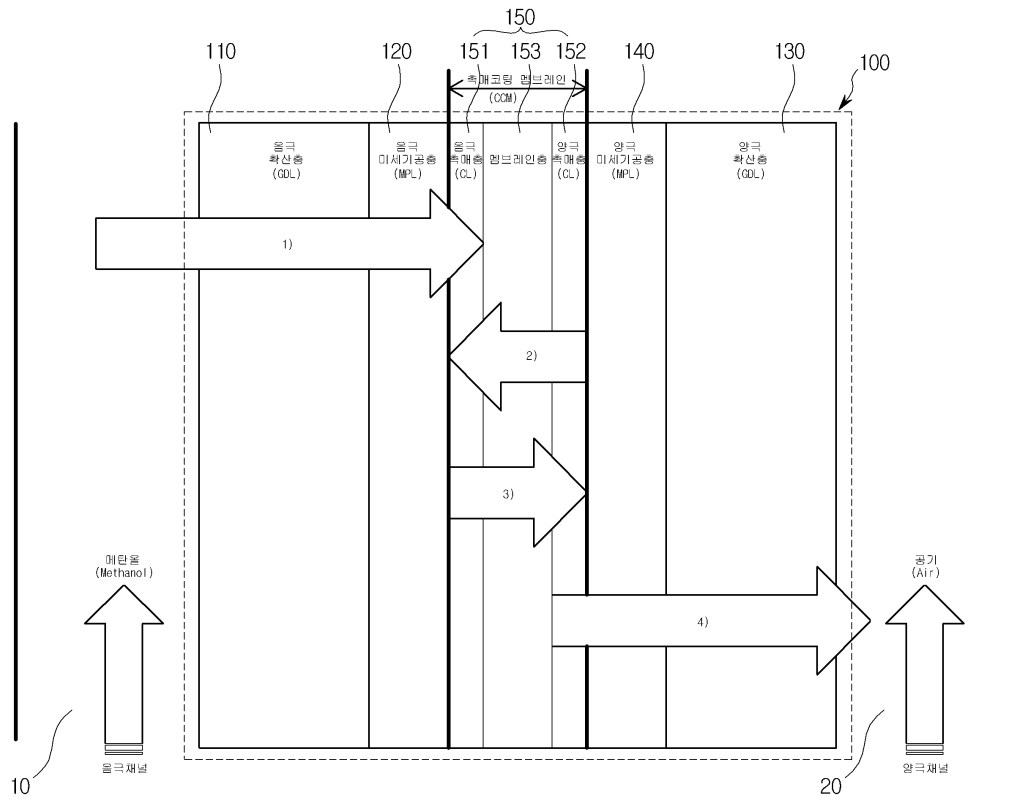
[0064] 도 5는 도 1에 도시된 막 전극 집합체의 전후방향에 대해, 음극 확산층의 PTFE 조성비 변화를 나타내는 평단면도이다.

[0065] < 도면의 주요부분에 대한 부호의 간단한 설명 >

[0066] 10: 음극채널	11: 분리판
[0067] 20: 양극채널	100,200,300,400: 막 전극 집합체
[0068] 110,210,310,410: 음극 확산층	120: 음극 미세기공층
[0069] 130,230: 양극 확산층	140: 양극 미세기공층
[0070] 150: 촉매코팅 멤브레인	151: 음극 촉매층
[0071] 152: 양극 촉매층	153: 멤브레인층
[0072] 311: 친수성층	312: 소수성층

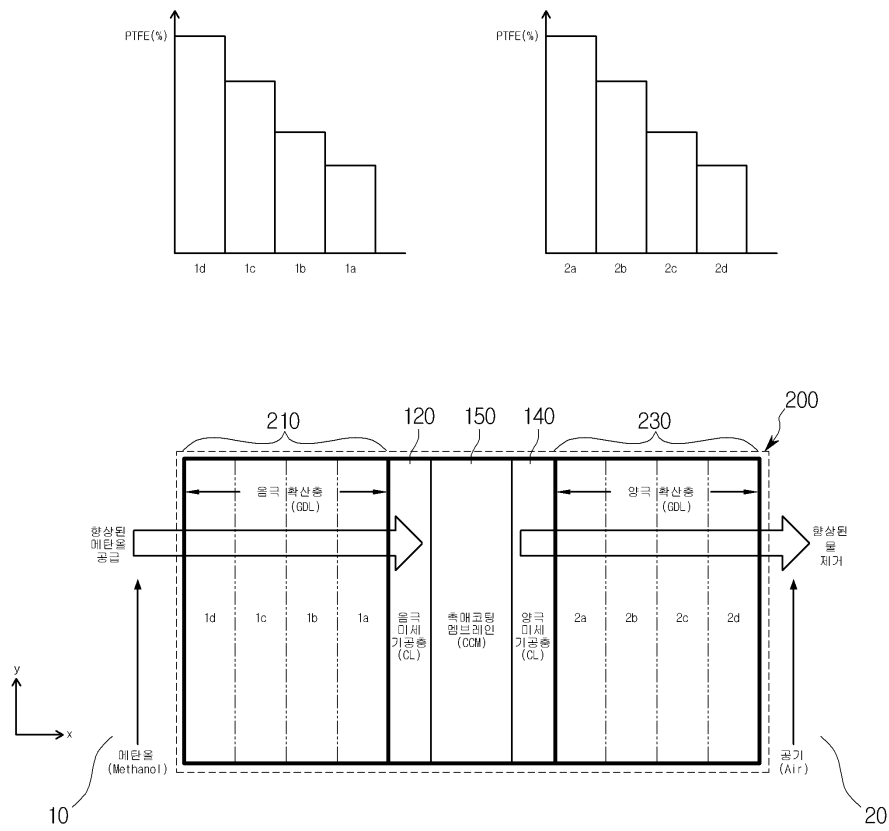
도면

도면1



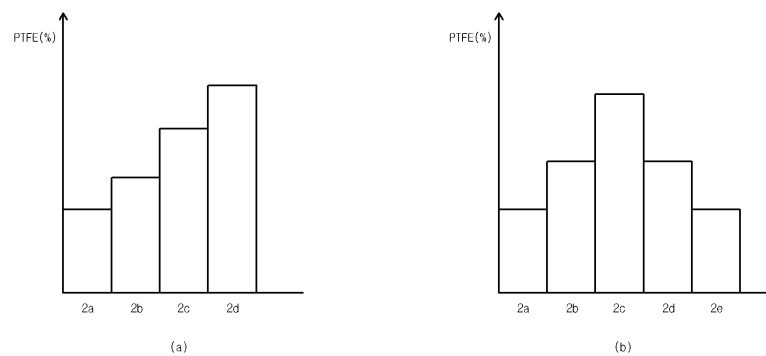
도면2

*PTFE: 폴리테트라플루오로에틸렌

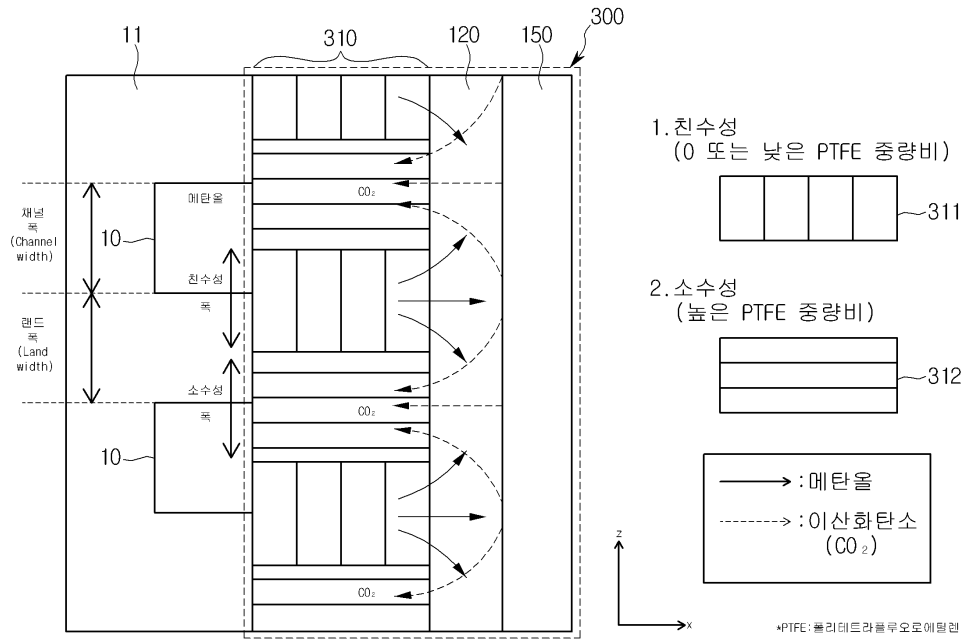


도면3

*PTFE: 폴리테트라플루오로에틸렌



도면4



도면5

