



(19) 대한민국특허청(KR)

(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2015년03월02일

(11) 등록번호 10-1494635

(24) 등록일자 2015년02월12일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

C01B 31/02 (2006.01) H01M 8/02 (2006.01)

H01M 4/96 (2006.01)

(21) 출원번호 10-2013-0086698

(22) 출원일자 2013년07월23일

심사청구일자 2013년07월23일

(65) 공개번호 10-2015-0011580

(43) 공개일자 2015년02월02일

(56) 선행기술조사문헌

Adv. Mater. 2013, Vol.25, pp.1993-1998
(2013.02.25.)*

*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자

고려대학교 산학협력단

서울특별시 성북구 안암로 145, 고려대학교 (안암동5가)

(72) 발명자

유종성

서울 관악구 난곡로 55, 102동 1404호 (신림동, 관악산휴먼시아아파트)

(74) 대리인

특허법인충현

전체 청구항 수 : 총 13 항

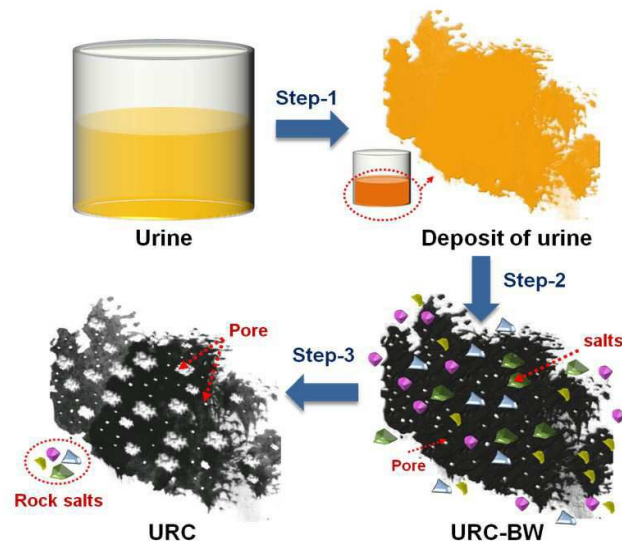
심사관 : 임도경

(54) 발명의 명칭 동물의 배설물을 이용한 헤테로원자 함유 다공성 탄소 구조체의 제조방법 및 이를 이용한 전극 소재

(57) 요약

본 발명은 인체 배설물을 이용한 탄소 구조체의 제조방법에 관한 것으로서, 특별한 탄소 전구체 물질로 추가 투입 물질 없이 간단하면서 친환경적으로 전극 재료로 사용되는 탄소 구조체를 제조하는 것을 특징으로 하고, 이렇게 제조된 탄소 구조체는 다양한 헤테로 원소를 포함하는 다공성 구조체이어서 에너지 소자의 전극 소재로 활용될 수 있고, 특히 연료 전지 및 리튬이차 전지의 전극 소재로 사용시 전기화학적 특성이 우수한 장점을 갖는다.

대표도 - 도1



이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 KRF 2010-0029245

부처명 교육과학기술부

연구관리전문기관 한국연구재단

연구사업명 전략연구

연구과제명 차세대 연료전지용 M1M2M3M4 다원계 최적 복합 전극 소재 및 특성평가

기 여 율 1/1

주관기관 고려대학교 산학협력단

연구기간 2010.09.01 ~ 2015.08.31

특허청구의 범위

청구항 1

O, N, S, P 및 Si으로 이루어지는 군으로부터 선택된 어느 하나 이상의 원자를 포함하며,
포유류 동물의 배설물을 건조시킨 탄소 전구체를 탄화시켜 제조되는 것을 특징으로 하는 다공성 탄소 구조체.

청구항 2

제 1항에 있어서,

상기 다공성 탄소 구조체의 라만 분광분석 결과는 $1,250\text{--}1,400\text{ cm}^{-1}$ 및 $1,400\text{--}1,650\text{ cm}^{-1}$ 에서 두 개의 피크가 형성 되어 이루어지는 것을 특징으로 하는 다공성 탄소 구조체.

청구항 3

제 1항에 있어서,

상기 다공성 탄소 구조체의 총 BET 표면적은 $550\text{--}2,000\text{ m}^2\text{ g}^{-1}$ 인 것을 특징으로 하는 다공성 탄소 구조체.

청구항 4

제 1항에 있어서,

상기 다공성 탄소 구조체의 세공부피는 $0.45\text{--}1.50\text{ cm}^3\text{ g}^{-1}$ 인 것을 특징으로 하는 다공성 탄소 구조체.

청구항 5

제 1항에 있어서,

상기 다공성 탄소 구조체의 마이크로 세공 표면적은 $200\text{--}1,400\text{ m}^2\text{ g}^{-1}$ 인 것을 특징으로 하는 다공성 탄소 구조체.

청구항 6

제 1항에 있어서,

상기 다공성 탄소 구조체의 평균 세공 직경은 $2.4\text{--}4.5\text{ nm}$ 인 것을 특징으로 하는 다공성 탄소 구조체.

청구항 7

삭제

청구항 8

제 1항에 있어서,

상기 다공성 탄소 구조체는 하기 [계산식 1]에 따른 Koutechy-Levich 식에 의한 기율기로부터 계산된 O_2 분자

하나당 전달되는 전자의 수(n)가 여러 다른 전압조건에서 3.0-4.0 인 것을 특징으로 하는 다공성 탄소 구조체.

[계산식 1]

$$(1) \quad J^{-1} = J_L^{-1} + J_k^{-1} = (B\omega^{1/2})^{-1} + J_k^{-1}$$

$$(2) \quad B = 0.62nFC_0(D_0)^{2/3}v^{-1/6}$$

$$(3) \quad J_K = nFkC_0$$

청구항 9

(a) 포유류 동물의 배설물을 건조시켜 O, N, S, P 및 Si으로 이루어지는 군으로부터 선택된 어느 하나 이상의 원자를 포함하는 탄소 전구체를 형성하는 단계;

(b) 상기 건조된 탄소 전구체를 질소 또는 헬륨, 네온, 아르곤, 크립톤, 제논, 라돈 및 이들의 혼합기체로 이루어지는 군으로부터 선택되는 비활성 기체를 주입하면서 탄화시키는 단계; 및

(c) 염산으로 세척하여 무기질 원소를 제거하는 단계;를 포함하는 다공성 탄소 구조체의 제조방법.

청구항 10

제 9항에 있어서,

상기 (a)단계에서 상기 O, N, S, P 및 Si으로 이루어지는 군으로부터 선택된 어느 하나 이상의 원자를 포함하는 탄소 전구체와 무기 암염을 동시에 형성하는 것을 특징으로 하는 다공성 탄소 구조체의 제조방법.

청구항 11

제 9항에 있어서,

상기 (a) 단계는 60-100 ℃에서 건조시키는 것을 특징으로 하는 다공성 탄소 구조체의 제조방법.

청구항 12

제 9항에 있어서,

상기 (b) 단계는 700-1,100 ℃에서 탄화시키는 것을 특징으로 하는 헥테로 함유 다공성 탄소 구조체의 제조방법.

청구항 13

제 9항에 있어서,

상기 (c)단계에서 염산의 농도는 0.05~0.20 M 인 것을 특징으로 하는 다공성 탄소 구조체의 제조방법.

청구항 14

제 1항 내지 제 6항, 제 8항 중 어느 한 항에 따른 다공성 탄소 구조체를 포함한 전극 소재.

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 동물의 배설물을 이용한 헤테로원자 함유 다공성 탄소 구조체의 제조방법 및 이를 이용한 전극 소재 개발에 관한 것이다.

배경기술

- [0002] 탄소 구조체는 구조적 기능적 특성을 요하는 미래의 첨단 응용분야에 가장 유망한 후보 물질로 여겨지고 있다.
- [0003] 뛰어난 성질을 가지는 탄소 구조체를 간단하게 저비용으로 합성하는 방법의 개발은 현재 재료화학 분야에서 최 우선 과제로 꼽힌다. 그러나 산업적 규모로 확장 가능한 고다공성 탄소의 합성방법 개발은 여전히 쉽지 않은 과제이다. 희생 템플릿, 엑소 템플릿 등의 여러 가지 방법이 개발되었으나, 이러한 방법들은 공정이 복잡하고 많은 시간과 비용을 요하며, 추가적인 물질을 투여해야만 탄소 구조체를 제조할 수 있는 문제점이 있다. 이렇게 추가적으로 투여되는 물질은 탄소 전구체인 원료는 물론 다량의 농축된 산 또는 염기로서 인체에 유해한 물질들을 포함한다. 이러한 경제적 및 환경적 측면에서의 단점이 산업적 규모의 탄소 구조체 개발에 있어 큰 장애가 되고 있다.
- [0004] 그러나, 상업적 용도에 맞도록 비교적 낮은 가격으로 충분한 양의 고다공성 탄소 구조체를 생산하기 위한 친환경적 방법에 대한 연구가 아직도 전세계적으로 미흡하여 많은 연구가 진행 중에 있다. 결국 뛰어난 구조적, 기능적 특성을 가지는 탄소 구조체의 제조를 위한 경제적이면서도 친환경적인 방법의 개발이 필요한 실정이다.
- [0005] 이러한 문제점을 해결하기 위한 방법으로 대한민국 공개특허공보 제10-2004-0014470호에서는 고체 고분자 전해질과 촉매 물질을 담지한 탄소 미립자로 이루어진 고체 고분자 전해질-촉매 복합 전극에 관한 발명이 개시되어 있다.

선행기술문헌

특허문헌

[0006] (특허문헌 0001) 특허문헌 1. 대한민국 공개특허공보 제10-2004-0014470호

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0007] 본 발명의 제조방법은 동물의 배설물을 이용하여 연료전지 및 리튬이차전지의 전극에 사용되는 헤테로원자 함유 다공성 탄소 구조체를 제공하는 것이다.
- [0008] 또한, 기존에 상용화된 연료전지 및 리튬이차전지 전극 재료에 비해 전기화학적 특성이 우수한 헤테로원자 함유 다공성 탄소 구조체를 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

[0009] 위와 같은 과제를 해결하기 위한 본 발명의 한 특징에 따른 헤테로원자 함유 다공성 탄소 구조체는 O, N, S, P 및 Si 중에서 선택된 1종 이상의 헤테로원자를 포함하고, 상기 탄소 구조체는 동물의 배설물을 건조시킨 탄소 전구체를 탄화시켜 제조된다.

- [0010] 본 발명의 또 다른 특징에 따른 헤테로원자 함유 다공성 탄소 구조체의 제조방법은 하기의 단계를 포함하는 것을 특징으로 한다.
- [0011] (a) 동물의 배설물을 건조시켜 O, N, S, P 및 Si 중에서 선택된 1종 이상의 헤테로원소를 포함하는 탄소 전구체를 형성하는 단계,
- [0012] (b) 상기 건조된 탄소 전구체를 질소 또는 헬륨, 네온, 아르곤, 크립톤, 제논, 라돈 및 이들의 혼합기체로 이루어지는 균으로부터 선택되는 비활성 기체를 주입하면서 탄화시키는 단계,
- [0013] (c) 염산으로 세척하여 무기질 원소를 제거하는 단계.

발명의 효과

- [0014] 본 발명에 따른 제조방법에 의하면, 동물의 배설물을 이용하여 특별히 탄소전구체로 추가 투입 물질 없이 간단하면서 친환경적으로 탄소 구조체를 제조할 수 있다. 이렇게 제조된 탄소 구조체는 다양한 에너지 소자의 전극 소재로 활용될 수 있고, 특히 연료 전지 및 리튬이차 전지의 전극 소재로 사용시 전기화학적 특성이 우수한 장점을 갖는다.

도면의 간단한 설명

- [0015] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따라 탄소 구조체를 제조하는 방법을 나타낸 개념도이다.
- 도 2는 다른 온도에서 합성된 염산으로 세척하기 전과 후의 URC물질의 SEM 사진이다.
- 도 3은 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소 구조체의 XRD 패턴 그래프이다.
- 도 4은 본 발명의 일 실시예에 따른 염산으로 세척한 용액을 건조하여 수득한 암염 (rock salt)을 미화 1센트 동전과 비교한 사진(A)이며, 또한 실바이트와 할라이트를 주성분으로 하는 암염 혼합물의 XRD 스펙트럼(B)와, 염산으로 체적하고 건조하여 수득한 암염 및 1000 °C로 탄화하는 동안 증발한 하여 가열로의 유리관에서 석출된 염의 SEM(C, D) 사진이다.
- 도 5는 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소 구조체의 TGA 및 DTG 분석 곡선을 나타낸 그래프이다.
- 도 6은 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소 구조체의 라만 분광분석 결과를 나타낸 그래프이다.
- 도 7은 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소 구조체의 질소 흡탈착 등온 곡선 및 세공크기의 분포 곡선을 나타낸 그래프이다.
- 도 8은 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소 구조체를 가지고 탄소의 C 1s에서 XPS 분석 그래프이다.
- 도 9는 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소 구조체의 산소환원 반응에 대한 RDE 분석 결과를 나타낸 그래프이다.
- 도 10은 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소 구조체의 압력변화에 따른 전기 전도성을 측정한 결과를 나타낸 그래프이다.
- 도 11은 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소 구조체를 가지고 질소의 N 1s에서 XPS 분석한 결과를 나타낸 그래프이다.
- 도 12는 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소 구조체와 상업용 촉매의 5,000 사이클 동안 E-TEK로부터의 안정성을 측정한 그래프이다.
- 도 13은 본 발명의 일 실시예에 따른 탄소 구조체와 상업용 촉매의 ORR 활성을 비교한 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0016] 이하, 본 발명을 더욱 상세하게 설명한다.
- [0017] 일반적으로 동물 배설물은 H, C, O 및 N으로 구성된 유기물질을 포함하고, 그 밖에 주요 고유 성분으로는 P, S,

Si, Na, K, Mg, Cl 등을 포함한다. 수소의 생산에 있어서, 동물의 배설물, 특히 소변이 이용된 예는 있으나, 동물의 배설물을 탄소 또는 다른 물질의 생산을 위한 전구체로 사용된 예는 전혀 보고된 바 없다.

[0018] 본 발명의 한 특징에 따른 헤테로 함유 다공성 탄소 구조체는 O, N, S, P 및 Si 중에서 선택된 1종 이상의 헤테로 원자를 포함하고, 상기 탄소 구조체는 동물의 배설물을 건조시킨 탄소 전구체를 탄화시켜 제조되는 것을 특징으로 한다. 상기 동물의 배설물은 인간을 비롯한 동물의 배설물이라면 특별한 제한 없이 모두 포함된다.

[0019] 상기 동물의 배설물을 건조시키는 온도는 바람직하게는 60-100 °C에서 건조시키며, 상기 탄화의 온도는 700-1,100 °C에서 이루어지는 것이 바람직하다.

[0020] 본 발명에 따른 탄소 구조체는 동물의 배설물을 상기와 같은 온도에서 건조 및 탄화시킨 결과 다공성 구조를 갖는 것을 특징으로 한다.

[0021] 구체적으로 본 발명에 따른 탄소 구조체의 라만 분광분석 결과는 1,250-1,400 cm^{-1} 및 1,400-1,650 cm^{-1} 에서 두 개의 피크가 형성되어 이루어지는 것을 특징으로 한다.

[0022] 또한, 상기 탄소 구조체의 총 BET 표면적은 550-2,000 m^2g^{-1} 인 것을 특징으로 하며, 탄소 구조체의 세공부피는 0.45-1.50 cm^3g^{-1} 인 것을 특징으로 하며, 마이크로 세공 표면적은 또는 200-1,400 m^2g^{-1} 인 것을 특징으로 한다. 또한, 상기 탄소 구조체의 평균 세공 직경은 2.4-4.5 nm인 것을 특징으로 한다.

[0023] 또한, 열중량분석 곡선(TGA)의 분석 결과 탄화의 온도가 700-1,100 °C 로 고온에서 나타나고 있으며, 이때의 최종 중량 손실은 83-96 %인 것을 특징으로 한다. 따라서, 본 발명에 따른 탄소 구조체는 열적 안정성 또한 매우 우수하다.

[0024] 또한, 하기 [계산식 1]에 따른 Koutechy-Levich 식에 의한 기울기로부터 계산된 O₂ 분자 하나당 전달되는 전자의 수(n)가 0.20 V인 경우 3.60개, 0.25 V인 경우 3.80개, 0.30 V인 경우 3.79개, 0.35 V인 경우 3.70개, 0.40 V인 경우 3.60개 또는 0.45 V인 경우 3.54개인 것을 특징으로 한다. 이러한 결과에서 볼 때, 각 전위에서 전달되는 전자의 수가 3.5 개를 넘는다는 것은 상용화된 Pt/C와 유사한 전기화학적 성질을 보이는 것으로서, 전기화학적으로 매우 우수한 효과를 가짐을 의미한다.

[0025] [계산식 1]

$$(1) \quad J^{-1} = J_L^{-1} + J_k^{-1} = (B\omega^{1/2})^{-1} + J_k^{-1}$$

$$(2) \quad B = 0.62nFC_0(D_0)^{2/3}v^{1/6}$$

$$(3) \quad J_K = nFkC_0$$

[0026]

[0027] 본 발명의 또 다른 특징에 따른 헤테로 함유 다공성 탄소 구조체의 제조방법은 하기의 단계를 포함하는 것을 특징으로 한다.

[0028] (a) 동물의 배설물을 건조시켜 O, N, S, P 및 Si 중에서 선택된 1종 이상의 헤테로 원자를 포함하는 탄소 전구체를 형성하는 단계,

[0029] (b) 상기 건조된 탄소 전구체를 질소 또는 헬륨, 네온, 아르곤, 크립톤, 제논, 라돈 및 이들의 혼합기체로 이루어지는 균으로부터 선택되는 비활성 기체를 주입하면서 탄화시키는 단계,

[0030] (c) 염산으로 세척하여 무기질 원소를 제거하는 단계.

[0031] 본 발명에 따른 다공성 탄소 구조체의 제조방법은 상기 (a) 단계에서 헤테로 원자를 포함하는 탄소 전구체와 동시에 무기 염염을 제조할 수 있는 것을 특징으로 한다.

[0032] 상기 (a) 단계의 건조는 60-100 °C의 온도에서 이루어지는 것이 바람직한데, 상기 건조가 60 °C 미만인 경우 건조 시간이 지나치게 길어지게 되어 바람직하지 않으며, 상기 건조의 온도가 100 °C를 초과하는 경우 탄화 전 탄소 전구체의 상태를 변질시킬 수 있어 바람직하지 않다.

- [0033] 또한, 상기 (b) 단계의 탄화는 700-1,100 ℃에서 이루어지는 것이 바람직하며, 이렇게 높은 온도 범위에서 탄화가 가능함은 본 발명에 따라 제조되는 헤테로원자 함유 다공성 탄소 구조체의 열적 안정성이 우수하기 때문이다.
- [0034] 상기 (c) 단계에서 염산으로 세척하는 이유는 탄소 구조체의 표면에 존재하는 무기질 및 기타 이물질을 제거하기 위함이고, 이러한 세척 과정을 통해서도 탄소 구조체에 세공이 보다 잘 형성될 수 있다.
- [0035] 상기 세공은 상기 탄소 구조체의 표면적을 증가시키고 이를 통해 전지의 용량 및 효율을 증대시킬 수 있으므로, 상기 염산으로 세척하여 세공을 형성하게 되면 우수한 탄소 구조체가 생산된다.
- [0036] 상기 염산의 농도는 0.05-0.20 M 인 것이 바람직한데, 상기 염산의 농도가 0.05 M 미만인 경우에는 세척 및 세공 형성의 효과가 충분하지 못해 바람직하지 않으며, 상기 염산의 농도가 0.20 M 을 초과하는 경우에는 탄소 구조체에 손상을 가할 수 있어 바람직하지 않다.
- [0037] 이하, 본 발명을 바람직한 실시예를 참고로 하여 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 상세히 설명한다. 그러나 본 발명은 여러 가지 상이한 형태로 구현될 수 있으며 여기에서 설명하는 실시예에 한정되는 것은 아니다.

[0038] **실시예 : 다공성 탄소 구조체의 합성**

- [0039] 사람의 소변 샘플을 입구가 넓은 고밀도 폴리에틸렌(HDPE) 플라스틱 병에 수집하였다. 수집된 소변 샘플의 평균 pH는 약 7-7.5였다. 수집된 소변 샘플을 80 ℃의 오븐 내에서 건조하여 노란색 침전을 얻었다. 일반적으로, 100 mL의 소변에서 노란색 침전을 얻기까지 48 시간이 소요되었다. 건조된 소변의 노란색 침전을 세라믹 보트로 옮기고 가열속도 2 ℃/min으로 6 시간 동안 관로 내에서 N₂ 기류 하에 탄화하였다. 탄화온도는 700 ℃에서 1,100 ℃까지 변화시켰다. 탄화 후 얻어진 흑회색 분말, 즉 URC-xx-BW(xx는 탄화온도를, BW는 세척 전(before washing)을 의미한다)를 미리 제조한 0.1 M HCl 용액(pH = 1)에 분산시켜 얻어진 탄소물질에 존재하는 무기 암염을 제거하였다. HCl 용액 내에 분산된 흑회색 분말을 약 30 분 동안 초음파 처리한 후 진공 여과하고 세척하여 흑색 탄소분말을 얻었다. 이 흑색 URC 물질을 80 ℃의 오븐에서 밤새 건조한 후 얻어진 여과물을 건조하여 유백색 암염 분말을 얻었다. 노란색 소변 침전물을 700 ℃에서 탄화하여 HCl로 처리한 것을 URC-700로 명명하였고, 800 ℃, 900 ℃, 1,000 ℃ 및 1,100 ℃에서 탄화한 것을 각각 URC-800, URC-900, URC-1000 및 URC-1100으로 명명하였다. 일반적으로, 1 L의 소변에서 0.7-1.0 g의 탄소와 염 혼합물로 구성된 흑회색 분말이 얻어졌고, 0.1 M HCl로 염, 기타 화합물 및 무기 암염을 제거한 후 최종적으로 300-1,000 mg의 다공성 탄소가 얻어졌다. 즉, 이 과정을 통해 고도의 구조를 갖는 고다공성 헤테로원자 함유 탄소 구조체와 더불어 유용한 무기 암염도 함께 얻어진다. 도 1은 본 실시예의 과정을 간략하게 나타낸 그림이다.

[0040] **실험예 1. <구조적 특성 확인>**

- [0041] (1) 주사전자현미경(SEM) 이미지는 가속전압 10 kV에서 작동하는 Hitachi S-4, 700 현미경을 사용하여 얻었다. 투과전자현미경(TEM) 이미지는 120 kV에서 작동하는 EM 912 Omega를 사용하여 얻었다. 고해상도 주사전자현미경(HR-SEM) 이미지는 30 kV에서 작동하는 Hitachi S-5,500 현미경을 사용하여 얻었다. 고해상도 투과전자현미경(TEM) 이미지는 200 kV에서 작동하는 JEOL FE-2,010 현미경을 사용하여 얻었다. X-선 광전자분광(XPS) 분석은 2.6×10^{-9} Torr의 기저압력에서 AXIS-NOVA(Kratos) X-선 광전자분광계와 단색 Al K α (150W) 광원을 사용하여 수행하였다. X-선 회절(XRD) 패턴은 Rigaku 1,200 회절계와 CuK α 광원 및 Ni β -필터를 사용하여 2° /min의 스캔속도로 얻었다. X-선 광원은 40 kV, 30 mA에서 작동하였다. 질소 흡탈착 등온곡선은 마이크로메트릭스 ASAP 2020 시스템을 이용하여 -196 ℃에서 측정하였다. 샘플의 비표면적은 질소 흡착 데이터로부터 0.05-0.2의 상대압력 범위에서 Brunauer-Emmett-Teller(BET) 식을 이용하여 결정하였다. 총 세공부피는 상대압력 0.99에서 흡착된 기체의 양으로부터 결정하였다. 세공크기 분포는 흡착가치로부터 Barrett-Joyner-Halenda(BJH) 법에 의해 결정하였다. 열중량분석(TGA)은 Bruker TG-DTA3000SA 열분석기를 사용하여 기류(60 mL/min) 하에 20 ℃/min의 가열속도로 실온에서 1,000 ℃까지 온도를 높이면서 수행하여 URC 탄소물질의 분해거동을 조사하였다. 라만 분광분석 측정은 Ar ion laser(λ =514.5 nm)를 사용하여 기록하였다. URC 탄소물질의 전기전도성 측정을 위하여

압력을 변화시켜 가며 전도도를 결정하였다. 측정을 위한 장치는 조절된 압력 아래 전기적 저항성을 측정하기 위한 전류 및 전압 측정장치와 관련 제어 회로로 구성된다. 전기적 저항성은 저항성 측정 장치 및 포텐티오메트릭 서킷을 사용하여 고정된 압력 아래 4개의 프로브를 사용하여 측정되었다. 샘플의 부피는 압력 챔버의 단면적에 대한 측정된 샘플의 두께와 넓이로부터 계산되었다.

[0042]

[0043]

(2) 도 2에서 합성된 탄소 소재의 조사전자현미경 (scanning microscope image :SEM)를 보면, 먼저 염산으로 세척하기 전 (A-E), 700-900 °C의 비교적 저온에서는 막대 또는 바늘 모양의 선형 구조가 잘된다. 또한 이와 별도로 입자모양의 구조체가 공존하고 있는 것을 알 수 있다. 탄화 온도가 900 °C이상 더 고온으로 증가하면, 선형 구조는 거의 없어지고, 입자 모양도 더 작은 입자로 변하며, 표면이 거칠어지고 다공 구조가 형성됨을 볼 수 있다. 관측된 선형 구조는 NaCl 또는 KCl 등의 무기질 염으로, 열처리도중에 발전된 형태이고, 900 °C 이상의 고온에서는 기화되어 크게 감소하고 없어진다. 한편 무기질 염을 제거하기 위해 염산용액으로 세척하면 (A' -E'), 무기질 염들이 모두 녹아 빠져 다양한 세공이 표면에 발달한 것을 볼 수 있다, 탄화온도가 증가 할수록 표면의 세공 크기가 더 감소하면서 보다 미세한 세공들이 발달하는 것을 알 수 있다.

[0044]

(3) XRD 패턴을 보여주는 결과는 도 3에 나타났다. 도 3에서 확인할 수 있는 바와 같이 상기 실시예에 의해 제조된 탄소 구조체는 탄소와 암염, 더욱 구체적으로는 실바이트와 할라이트의 혼합물로 확인되었다.

[0045]

도 3에서의 XRD 패턴은 JCPDS-00-001-0790(실바이트, Sylvite; KCl) 및 JCPDS-01-072-1688(할라이트, Halite; NaCl)와 잘 일치하였다.

[0046]

●는 그 밖에 소량으로 존재하는 염의 신호이다. 실바이트 암염의 XRD 신호 강도는 할라이트와 달리 탄화온도가 증가함에 따라 서서히 감소하여 1,000 °C이상에서는 거의 사라진다. 그 이유는 탄화온도가 900 °C이상으로 증가하면 기화된 고체가 승화에 의해 관로 내부에 흰색 분말로 침적되는데, 이 때문에 그 암염의 XRD 세기가 탄화온도를 증가시키면 점진적으로 감소한다. 한편 관로내부에 침적된 흰색분말은 XRD 분석에 의해 기화된 주로 실바이트임이 확인된다. 탄소의 반사피크는 암염의 피크에 비해 작아서 확연하게 관찰되지 않았다.

[0047]

URC-1000과 URC-1100의 경우 25° 부근에 넓은 탄소 피크가 분명하게 나타나는데, 이는 고온에서 암염들이 승화되어 그 농도가 감소하기 때문에, 이전에 세기가 작아서 분명히 관측되지 않던 탄소의 시그널이 관측되기 때문이다. 더 낮은 탄화온도에서 얻어진 샘플에서는 이 탄소 피크가 관측되지 않았다. 그 이유는 더 낮은 온도에서 준비된 샘플에 더 많은 양의 염이 존재하기 때문으로 판단된다. 한편 합성된 탄소소재는 염산으로 세척하게 되면 탄소구조에 남아있던 염들이 모두 제거되어, 염산 세척후 측정된 XRD에서는 암염의 시그널이 거의 관측되지 않았다.

[0048]

(4) 도 4 A는 본 실시예에 따라 700 °C에서 탄화하여 얻은 탄소 구조체를 염산으로 세척해, 녹여낸 염들이 들어 있는 염산 용액을 건조하여 얻은 암염을 미화 1센트 동전과 비교한 사진이다.

[0049]

한편, 도 4 B는 실바이트와 할라이트를 주성분으로 하는 암염 혼합물의 XRD 스펙트럼이며, 무기 암염 혼합물은 대체로 실바이트와 할라이트로 구성된다. 이는 JCPDS-00-001-0790(실바이트) 및 JCPDS-01-072-1688(할라이트)와 잘 일치하였다.

[0050]

하기 도 4 B에서 보는 바와 같이 그 외 확인되지 않은 다른 소량의 암염 또한 존재하였다. 또한 도 4 B의 (a)로부터 URC-1000-BW를 염산으로 세척해 필터링함으로써 수집된 건조한 암염 혼합물은 실바이트와 비교하여 할라이트 피크가 상대적으로 보다 강하게 나타났다. 한편 URC-1000-BW용 관로 내부의 벽에서 획득한 기화된 염 침전물은 (b)의 XRD 스펙트럼 피크에서 알 수 있듯이 일반 할라이트 피크에 비해 실바이트가 상대적으로 많이 증가된 피크를 보여주는데, 이는 결과적으로는 실바이트가 주로 기화되는 것을 증명한다. 또한, 도 4 C의 SEM 이미지는 탄소구조체를 염산으로 정제 과정에서 처리후 건조하여 얻은 시료에 대한 막대 또는 바늘과 같은 형태의 암염 파티클을 보여준다. 또한, 기화된 염은 도 4 D의 SEM 이미지에서 보듯 1,000 °C의 관로 내부에 벽에서 얻은 것으로 구형 및 각진 입자형태로 관찰되었다. 이러한 염 형태는 ca. 1 μm 보다도 작은 사이즈로서 6면 입방체 형태의 파티클 혼합물에서 주로 발견된다. 그리고 유사 형태와 사이즈의 파티클은 1,100 °C에서도 관찰되었다.

[0051]

(5) 하기 도 5 A는 실시예에 따른 탄소 구조체의 온도에 따른 중량 변화를 보여주는 열중량분석(TGA) 곡선이다. 탄소 구조체가 여러 분야에서 이용되기 위해서는 열 안정성을 요하며 물질의 탄소함량은 TGA에 의해 쉽게 결정

할 수 있다. 도 5 A에서, 100 °C 이하에서의 중량 손실은 주로 흡착된 물의 증발에 의한 것이다. URC-700과 URC-800은 460 °C 이상에서, URC-900, URC-1000 및 URC-1100은 약 570 °C에서 탄소가 서서히 연소되기 시작하며, 이는 우수한 열적 안정성을 나타내는 것이다. 또한 온도가 더 증가하면 탄소가 빠르게 분해되고 700 °C 이상에서는 거의 완전히 분해된다. URC-700, URC-800, URC-900, URC-1000 및 URC-1100의 최종 중량 손실은 각각 95.5 %, 91.3 %, 89.6 %, 93.3 % 및 92.5 %로 이는 단지 10% 미만의 소량의 무기질 불순물이 존재함을 보여준다. 샘플의 중량이 갑자기 감소하는 것은 탄소 구조체가 열분해 되었음을 의미한다. 이러한 고온에서 탄소가 열분해되는 열적 안정성은 탄소물질이 수많은 용도로 사용될 수 있음을 의미한다.

[0052]

이러한 URC 물질은 우수한 열적 안정성을 보여주고 DTG 온도 곡선은 도 5 B에서 보여지는 바와 같이 최대치의 중량 손실 비율에 해당하는 온도를 나타낸다. DTG 곡선에 따르면 분해 온도의 범위는 탄화온도가 증가함에 따라 보다 높은 온도로 이동한다. 그리고 중요한 점으로서 URC-700에서 URC-1100까지 대략 47 °C까지 증가하며, 이는 탄화 온도의 증가가 URC 물질의 열적 안정성을 상당히 향상시킴을 가르킨다.

[0053]

(6) XPS 분석 결과는 모든 샘플에서 N을 제외한 비금속 헤테로원자, 예컨대 S, Si 및 P는 비교적 낮게 나타났다 (각각 < 1 원자%). 따라서, URC 물질 내 존재하는 헤테로원자에 의해 야기되는 전자구조의 변화를 라만 분광분석을 통해 조사하였다. 라만 분광분석 결과(도 6), 탄화온도가 700 °C에서 1,100 °C로 증가함에 따라 피크의 강도가 증가하는 것으로 나타났다. D와 G 밴드로 구성된 라만스펙트럼은 이러한 밴드의 위치가 5개의 모든 URC 물질에서 서로 유사하였고, 이는 모든 탄소 구조체가 유사함을 의미한다. 그러나, URC 샘플들의, 밴드세기 비, 즉 ID/IG 비는 탄화온도에 따라 상당한 차이를 보이는 것을 라만 스펙트럼으로부터도 확인할 수 있다. 탄화온도에 따른 그 세기 비의 증가는 탄소구조가 약간 무질서해짐을 의미한다. 이는 헤테로원소가 탄소 구조체 골격에 치환됨으로써 무질서도가 증가한 것으로 해석될 수 있다. 또한, 탄화온도가 높은 경우, 즉 URC-1100의 경우, 낮은 탄화온도에서 제조된 샘플에 비해 2차 D' 및 G' 밴드가 더 뚜렷하게 나타난다는 점에 주목할 필요가 있다. 그 이유는 sp^2 혼성화된 그래파이트 탄소의 무질서도가 증가함에 따라 D 및 G 밴드가 낮은 탄화온도에서 제조된 샘플에 비해 높은 주파수 쪽으로 이동하기 때문인 것으로 판단된다. URC-1100의 D 및 D' 밴드 피크가 강하게 나타나는 것은 높은 탄화온도에서 얻어진 URC-1100 내부의 다양한 결합구조와 결합 때문으로 판단된다. G 밴드 피크는 네 샘플 모두에서 약 $1,570\text{ cm}^{-1}$ 로 순수한 그래핀 피크($1,589\text{ cm}^{-1}$)에 비해 하향 이동하였는데, 이는 탄소 구조 내에 비금속 헤테로원자가 존재함으로 기인한다.

[0054]

(7) 하기 도 7의 A는 실시예에 따른 탄소 구조체의 질소 흡탈착 등은 곡선이고, 도 7의 B는 세공크기의 분포 곡선이다. 실시예에 따라 얻어진 탄소 구조체의 표면특성은 ORR 용 전극물질로 사용하는 경우 전기화학적 성능과 관련하여 매우 중요하다. 하기 [표 1]은 실시예에 따른 탄소 구조체의 총 BET 표면적, 세공부피 및 세공직경을 요약하였다.

[0055]

본 URC 구조체에서 세공구조는 주로 두 가지 과정에 의해 생성될 수 있다. 첫째로, 소변 내에 존재하는 염이 탄화과정에서 증발하여 세공이 형성된다. 둘째로, 탄화 후 탄소구조에 잔류하는 염 입자를 묶은 산으로 세척하는 과정에서 세공이 형성된다. N_2 등온곡선으로부터 URC 탄소의 표면특성 변화를 확인할 수 있다. BET 표면적은 URC-700에서 $1,081\text{ m}^2/\text{g}$ 이던 것이 URC-800에서 $1,437\text{ m}^2/\text{g}$ 으로 증가하지만, URC-900과 URC-1000에서 $1,055\text{ m}^2/\text{g}$ 와 $812\text{ m}^2/\text{g}$ 으로 감소한다. 탄화온도가 1,000 °C 이상으로 더 증가하면 표면적이 감소하는데, 이는 상당량의 염이 이미 증발하여 묶은 산으로 세척하여 세공을 형성하는 효과가 크지 않기 때문인 것으로 판단된다. 특히 1,000 °C 이상인 경우, 거의 모든 염 입자가 증발하여 관로 내부에 승화에 의해 침적되는 것이 확인되는데, 이는 탄소 구조체의 급격한 중량 감소와 URC-1100 BW의 XRD 분석 결과 염에서 기인하는 XRD 세기가 매우 약한 강도를 보이는 것에 의해서도 뒷받침된다(도 3). 또한, 탄화온도는 탄소 구조체 내 마이크로 세공의 형성에 강한 영향을 미친다. 마이크로 세공의 총부피와 비표면적을 측정한 결과에서 보듯이 온도가 증가함에 따라 마이크로 세공이 감소한다. N_2 등온곡선에서 관찰되는 히스테리시스스는 주로 메조세공에 의한 것이다. 기체흡착분석기를 이용하여 탄화온도와 세공부피의 영향을 측정한 결과에 근거할 때, 염의 증발에 의해 형성되는 세공은 주로 메조세공과 매크로세공이고, HCl 세척에 의해서는 주로 마이크로세공과 매크로 세공이 형성되는 것으로 생각된다. 또한, URC-700, URC-800 및 URC-900의 평균 세공 직경은 $2.6 \pm 0.1\text{ nm}$ 로 탄소구조에 따른 차이가 거의 없었다. 그러나, URC-1000과 URC-1100은 평균 세공 직경이 3.2 nm 로 증가하였는데, 이것은 탄화 과정과 그 이후의 염 증발 과정에서 다수의 메조세공과 매크로세공이 형성되기 때문인 것으로 판단된다.

표 1

샘플	원소 조성 (%)						물리적 특성				
	C 1s	O 1s	N 1s	S 2p _{3/2}	Si 2p	P 2p	총 BET 표면적 (m ² g ⁻¹)	마이크로 세공표면적 (m ² g ⁻¹)	세공부피 (cm ³ g ⁻¹)	마이크로 세공부피 (cm ³ g ⁻¹)	BJH 세공크기 (nm)
URC-700	78.2	9.8	9.8	0.9	1.0	0.3	1080.8	1037.3	0.55	0.46	2.5
URC-800	81.9	7.7	8.5	0.9	0.7	0.3	1436.8	1349.7	0.83	0.71	2.7
URC-900	82.6	9.8	5.6	0.8	0.5	0.7	1054.7	1009.9	0.53	0.47	2.5
URC-1000	86.3	9.7	2.6	0.9	0.3	0.2	811.7	237.4	0.58	0.12	3.2
URC-1100	87.0	9.1	2.2	0.9	0.4	0.4	602.2	210.4	0.47	0.10	3.2

상기 [표 1]에서 확인할 수 있는 바와 같이 탄소의 함량은 URC-700에서 URC-1100으로 증가하는 경향을 확인할 수 있다. 유사하게 C-C 결합 i.e. sp²-타입(284.6 eV)와 sp³-타입(285.3 eV)의 주요한 피크는 또한 도 8에 의하면 전체 탄소 함량과 함께 증가한다. 또한 탄화온도 증가에 따라 비교적 sp² 혼성화의 증가는 sp³ 혼성화보다 크다. 결합 에너지 ~288 eV 이상에서 관측되는 작은 피크는 산소 또는 질소가 탄소에 대하여 다른 결합으로 배치되기 때문이다.

실험예 2. <회전원판 전압전류 측정>

실시예에 따른 탄소 구조체 물질들의 ORR에 대한 전기화학 성능을 조사하기 위하여 회전원판전극(rotating disk electrode: RDE) 측정을 수행하였다. 회전원판전극(RDE) 측정은 O₂로 포화된 0.1 M KOH 용액 내에서, 회전속도를 500-3,500 rpm으로 변화시키면서 0.3 ~ -1.2 V의 전압범위에서 스캔속도 10 mV/s로 수행하였다. 확산전류는 회전속도에 의존한다. ORR에 참여하는 전자의 수는 아래의 [계산식 1]인 Koutecky-Levich(K-L) 식으로부터 계산할 수 있다.

[계산식 1]

$$(1) \quad J^{-1} = J_L^{-1} + J_K^{-1} = (B\omega^{1/2})^{-1} + J_K^{-1}$$

$$(2) \quad B = 0.62nFC_0(D_0)^{2/3}\nu^{1/6}$$

$$(3) \quad J_K = nFkC_0$$

여기에서 J는 측정된 전류밀도, JK와 JL는 속도지배 전류밀도와 확산한계 전류밀도, ω 는 원판의 각속도($\omega = 2\pi N$, N은 회전 선속도), n은 산소 환원 과정에서 전달되는 전자의 총 수, F는 패러데이 상수($F = 96485 \text{ C} \cdot \text{mol}^{-1}$), C₀는 O₂의 벌크농도($C_0 = 1.2 \times 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{cm}^{-3}$), ν 는 전해질의 역학점도($\nu = 0.1 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$), D₀는 0.1 M KOH 내에서 O₂의 확산계수($1.9 \times 10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)이다. 식 (1)과 (2)에 의하면, 전달되는 전자의 수(n)와 JK는 각각 Koutecky-Levich 도의 기울기와 절편으로부터 구할 수 있다.

도 9는 다양한 회전속도에서 (A) URC-700, (B) URC-800, (C) URC-900, (D) URC-1000 및 (E) URC-1100 전극물질의 ORR에 대한 선형유티 전압전류(linear sweep voltammetry: LSV) 곡선과 (F) Ag/AgCl 대비 전위에 따른 URC-1000 전극물질의 Koutecky-Levich 도이다. 또한, 회전속도 증가에 따른 URC 전극의 ORR 성능을 알기 위하여 RDE 전압전류 측정을 수행하였다. 도 9 A-E는 URC 탄소전극들의 회전속도에 따른 RDE 전류밀도-전위 곡선이다. 5종의 탄소 구조체 모두 회전속도가 증가함에 따라 한계 전류밀도가 증가하였다. 회전속도가 일정한 경우 URC-1000 전극의 전류밀도가 다른 URC 탄소전극들에 비해 높았다. URC-1000 전극의 전류밀도가 다른 전극에 비해 높은 이

유는 효과적인 4전자 경로 때문으로 판단된다. 산소 환원 반응시 각 URC-1000 전극에서 산소분자 하나 당 전달되는 전자의 수를 상기 Koutechy-Levich 식에 의해 계산하였다. 도 9 F에서 보듯이, URC-1000 전극의 경우 각 전위에서 $j-1$ 와 $\omega^{1/2}$ 사이에 선형적인 관계가 관찰되었다. K-L 도의 기울기로부터 계산된 O₂분자 하나 당 전달되는 전자의 수(n)는 0.20 V인 경우 3.60개, 0.25 V인 경우 3.80개, 0.30 V인 경우 3.79개, 0.35 V인 경우 3.70개, 0.40 V인 경우 3.60개 또는 0.45 V인 경우 3.54개였다. URC-1000 전극의 경우 각 전위에서 전달되는 전자의 수가 3.5개를 넘는다는 것은 상용화된 Pt/C 전극과 유사하게 효과적인 4전자 경로에 의한다는 것을 의미한다.

[0064] 실험예 3. <전기화학적 활성 측정>

[0065] 전기화학적 셀의 전극재료로서의 조사에서 전기전도성 측정이 이러한 물질의 가장 본질적인 특성 중 하나이다. 여기서 적용된 압력과 전기적 저항에 대한 작용으로서 저항성은 고정된 압력 아래서 저항 측정 장치 및 전위차 회로를 사용하여 측정하였다. URC 물질의 전기적 저항성은 상업적 그래파이트와 비교하여 측정되었다. 이러한 결과는 도 10의 그래프에서 확인할 수 있다. 도 10에서 볼 수 있는 바와 같이 압력이 증가하면 전기 저항성은 그래파이트를 포함한 모든 샘플에서 감소하였다. 게다가 탄화 온도가 증가할수록 동일한 압력에서 저항성은 모든 샘플에서 감소하였다. 즉 낮은 온도(700 °C)에서 획득한 URC 탄소가 높은 저항성을 나타낸다. 반면에 점진적으로 800 °C 및 보다 높은 온도에서 감소하였으며 우수한 전기 전도성을 위해서 800 °C보다 높은 온도에서 탄화가 수행되는 것이 바람직하다는 것을 나타낸다. 이러한 실시예로 획득한 URC-1000 및 URC-1100은 그래파이트와 및 그래파이트와 유사한 전기 전도성을 나타낸다. 도 10는 탄화 온도의 함수로 전기 저항성(at 8 Mpa)과 함께 ORR의 활성을 비교하였으며, 이는 명백히 URC-1100을 제외하고는 명백하게 전기 전도성에 의존하는 URC 물질의 전기화학적 활성을 보여준다.

[0066] 도 11 A는 다른 탄화 온도에서 준비된 URC 물질의 N 1s에서의 XPS 스펙트럼을 보여준다. 일반적으로 탄화온도가 증가할 때, 질소의 담지율이 감소한다. (도 11 B) 또한 주목할 것은 다른 N 결합을 가지는 다른 질소 종들이 탄화온도의 증가와 함께 그 안정도의 차이에 따라 그 상대적 분포가 변화하였다. 특히 피리니딕(pyridinic)과 피로릭(pyrolic) 질소 함량은 저온에서는 높지만, 탄화온도가 상승할 때 그 안정성이 약해 비교적 급격히 감소하였다. 한편 흥미롭게도 육각 탄소 고리에 포함된 N 종(Quaternary-N)들도 온도가 증가할 때 함량이 감소하지만, 상대적으로 다른 N 종에 비해 감소율은 적었다. 그러므로 Quaternary-N의 상대적인 양은 피리니딕과 피로릭 N 종들과 비교하여 상대적으로 보다 우수한 안정성 때문에 온도가 증가할수록 그 감소율이 적게 된다. 또한 모든 탄소 물질은 403 eV 이후에 minor terminal-N의 존재를 보여준다.

[0067] 도 11 C는 전체 질소 함량과 탄화 온도의 함수로 ORR로부터 획득한 전류 밀도의 변화를 제시한다. 흥미롭게도 탄화온도의 증가로 인해 전체 질소 함량은 감소하지만 전류 밀도는 URC 물질에서 전체 증가한다. 이는 비교적 낮은 탄화 온도에서 합성한 시료에서 질소 (3 %보다 많음)의 존재가 상대적으로 높기 때문에, 높은 N의 함량으로 인해 전기 전도성이 감소하고 (도 11 B) 이로인해 전반적인 ORR의 활성이 줄어든다는 사실로 이해할 수 있다. 또는 탄화온도가 증가할 때, ORR 활성을 증가시키는 것으로 알려진 질소의 함량이 감소함에도, 활성이 증가하는 현상은 N의 함량이 다소 감소한다 해도, 전기전도도가 증가 (즉 전기저항이 감소) 하여 활성이 증가한다고 생각할 수 있다. 다시 말해 URC-700, URC-800, URC-900과 비교하여 URC-1000의 ORR 활성이 보다 높은 이유는 도 10에서 보여지는 전기 전도성과 관련이 있다. 한편 URC-1100은 높은 전기 전도성이 있음에도 불구하고 (즉 URC-1100과 비교하여 단지 약간의 전도도 향상이 있지만), 그것의 낮은 활성은 주로 낮은 표면적과 같은 요인에 기인한 것으로 판단된다.

[0068] URC 물질의 안정성을 결정하기 위하여 긴 간격의 사이클 실험이 도 12와 같이 수행되었다. 5,000회까지 잠재적 사이클이 반복되는 동안, URC-1000 와 E-TEK로부터 상업적 20 wt% Pt/C 촉매의 ORR에서 최대 피크 전류를 측정하였다. 상용 20 wt% Pt/C 촉매는 사이클이 진행될수록 ORR 활성이 급격하게 감소하는 반면, URC-1000의 경우엔 활성 감소가 매우 서서히 일어났고 4000 사이클 이후엔 거의 활성변화가 거의 일어나지 않아, URC-1000의 성능은 상용 20 wt% Pt/C 촉매 보다도 높은 장기간 안정성을 가짐을 증명하였다. 5000 사이클 후에 URC-1000은 약 35%의 활성 감소만을 보인 반면, 상업적 Pt/C 촉매는 초기활성의 73 %이상을 잃어버렸다.

[0069] 일반적으로 Pt 나노입자는 연료전지 내 산소 환원반응의 전기촉매로서 잘 알려져 있으나, 알코올 연료전지의 경우 알코올이 Pt 활성부위를 막아 산소환원반응 활성을 크게 떨어뜨릴 수 있다. 그러므로 메탄올의 존재에서 ORR

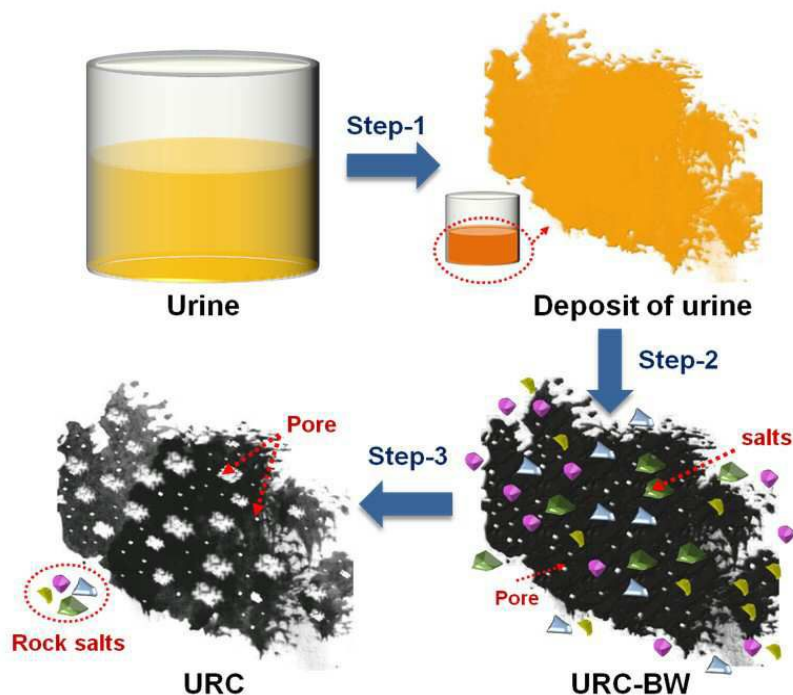
에 대한 URC-1,000와 상용 20 wt% Pt/C 촉매의 전기활성을 조사하였다. 도 13은 URC-1000과 상용 Pt/C 촉매의 ORR 활성을 비교한 CV 곡선이다. 도 13 A는 URC-1000의 메탄올 존재 및 부재하에서 0.22 V에서 관측되는 ORR 시그널과 함께 우수한 ORR 활성을 보여준다. 3.0 M의 메탄올 존재하에서도 메탄올에 무관하게 URC-1000은 산소만 선택적으로 환원시킴을 알 수 있다. 즉 URC-1000 (도 13 A)는 메탄올 산화에 대한 특이적 활성을 보이지 않으며 ORR 특유의 피크가 그대로 유지되는데, 이로써 URC-1000 촉매는 메탄올에 대하여 완전히 비특이적임을 알 수 있다. 한편 도 13 B는 동일한 메탄올(3.0 M) 존재 하에 O₂로 포화된 전해질 내에서의 상용 20 wt% Pt/C 촉매의 CV 곡선이다. 상용 20 wt% Pt/C 촉매의 경우, 메탄올 존재시 메탄올의 산화가 우세하여, 산소 환원반응의 캐소드 피크가 사라진 것을 알 수 있다. 직접 메탄올 연료전지(DMFC)의 중요한 문제점 중 하나는 메탄올이 산화전극 쪽에서 환원전극쪽으로 전해질막을 통해 넘어온다는 점과 우수한 성능을 보장하기 위해서는 캐소드 촉매가 메탄올에 대해 내성을 가져야 한다는 점이다. 고농도의 메탄올 연료의 경우 메탄올 크로스오버에 의한 Pt/C 상에서의 메탄올의 산화가 뚜렷하게 나타나는데, 이는 전지의 성능을 크게 저해하는 요인이 된다. 연구 결과, URC-1000은 뛰어난 메탄올 내성으로 인해 산소를 환원시키면서도 메탄올에는 내성을 가지므로 DMFC의 전지 성능을 향상시킬 수 있을 것으로 기대된다. 이러한 특성은 고농도의 메탄올을 직접 연료로 이용하도록 고안된 수동형 DMFC에의 응용에 적합하다.

[0070]

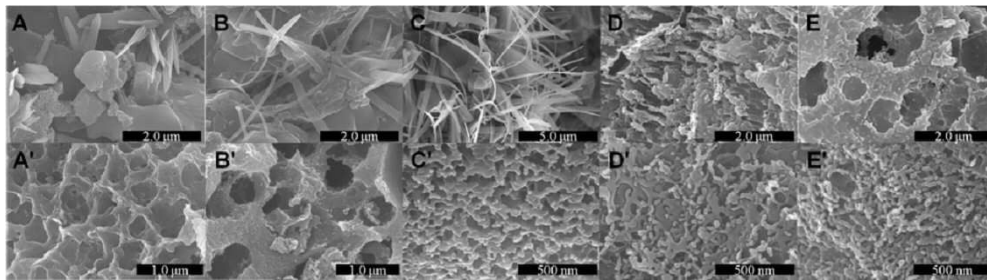
상기에서는 본 발명의 바람직한 실시예에 대하여 설명하였지만, 본 발명은 이에 한정되는 것은 아니고, 본 발명의 기술 사상 범위 내에서 여러 가지로 변형하여 실시하는 것이 가능하고, 이 또한 첨부된 특허 청구 범위에 속하는 것은 당연하다.

도면

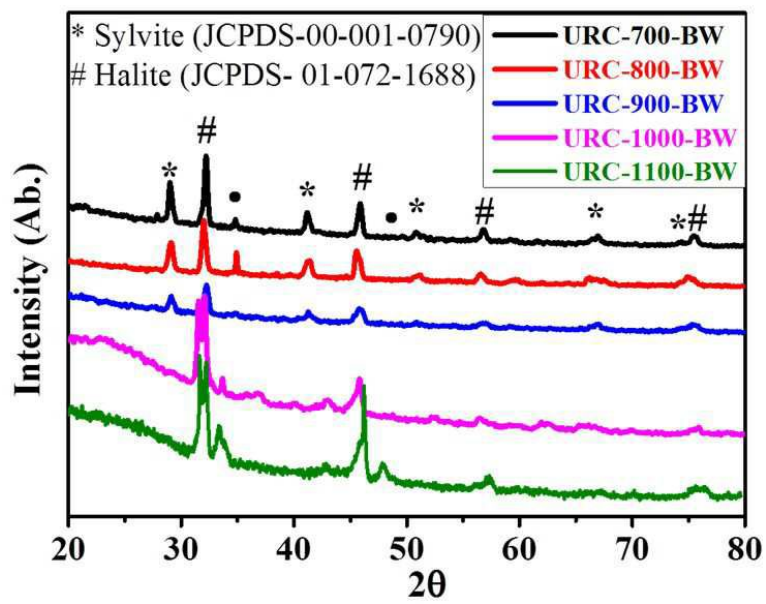
도면1



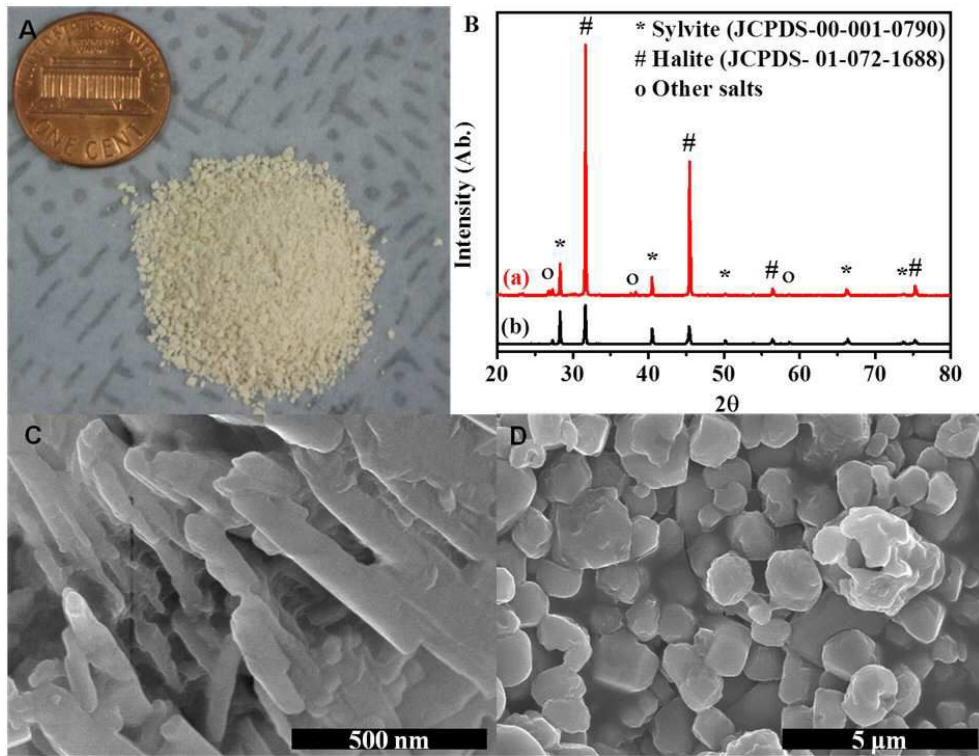
도면2



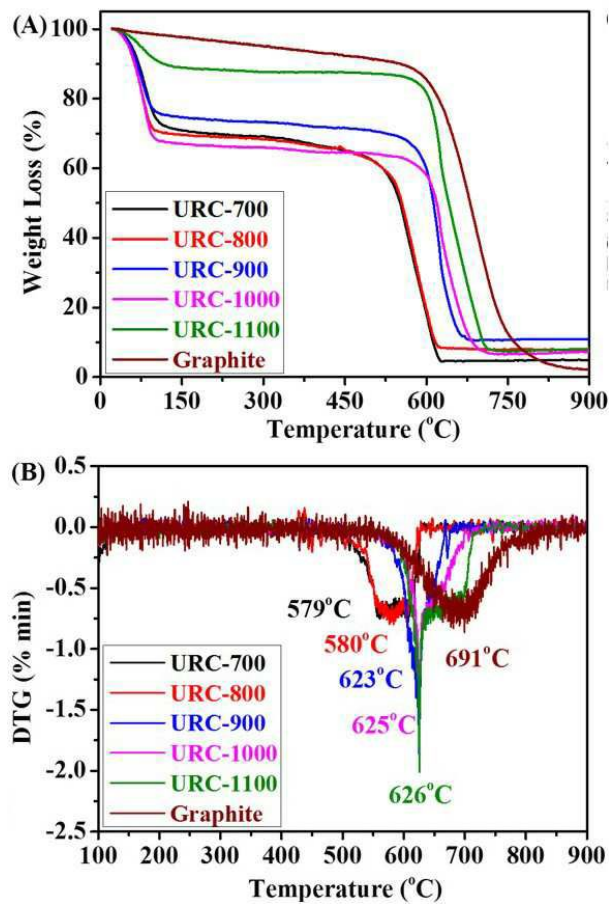
도면3



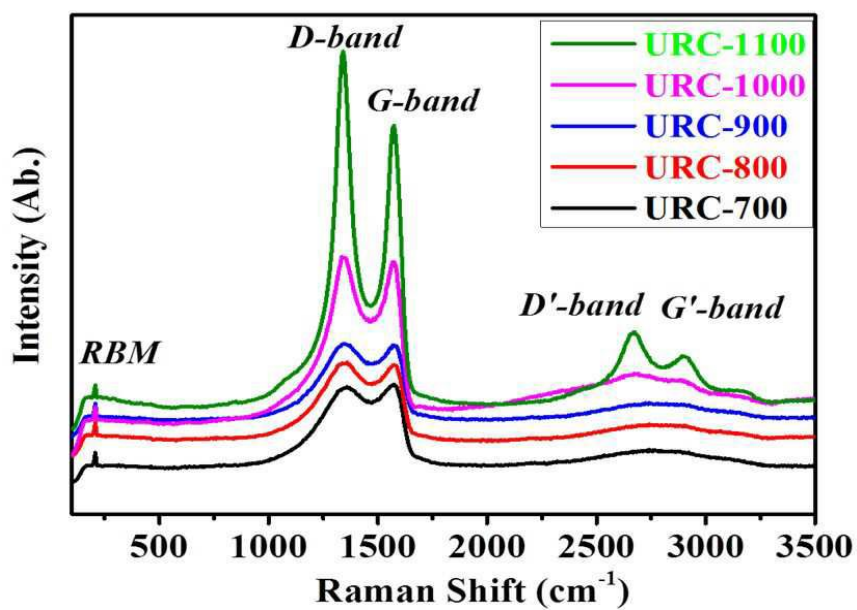
도면4



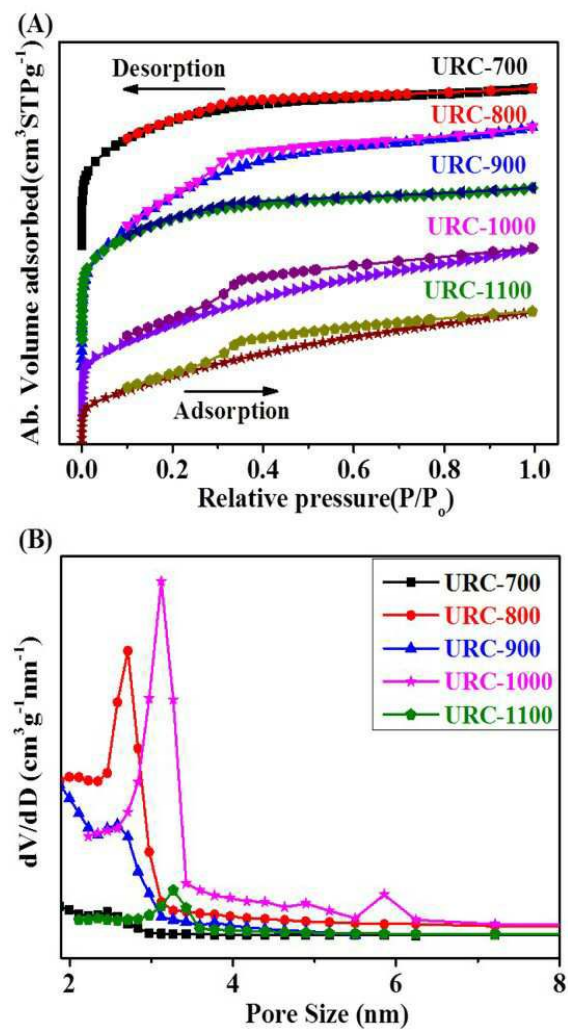
도면5



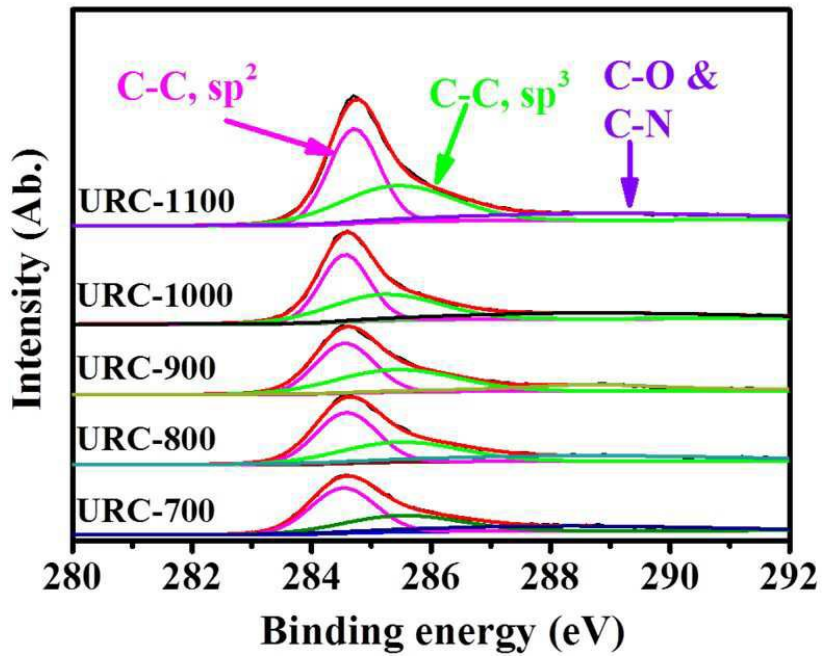
도면6



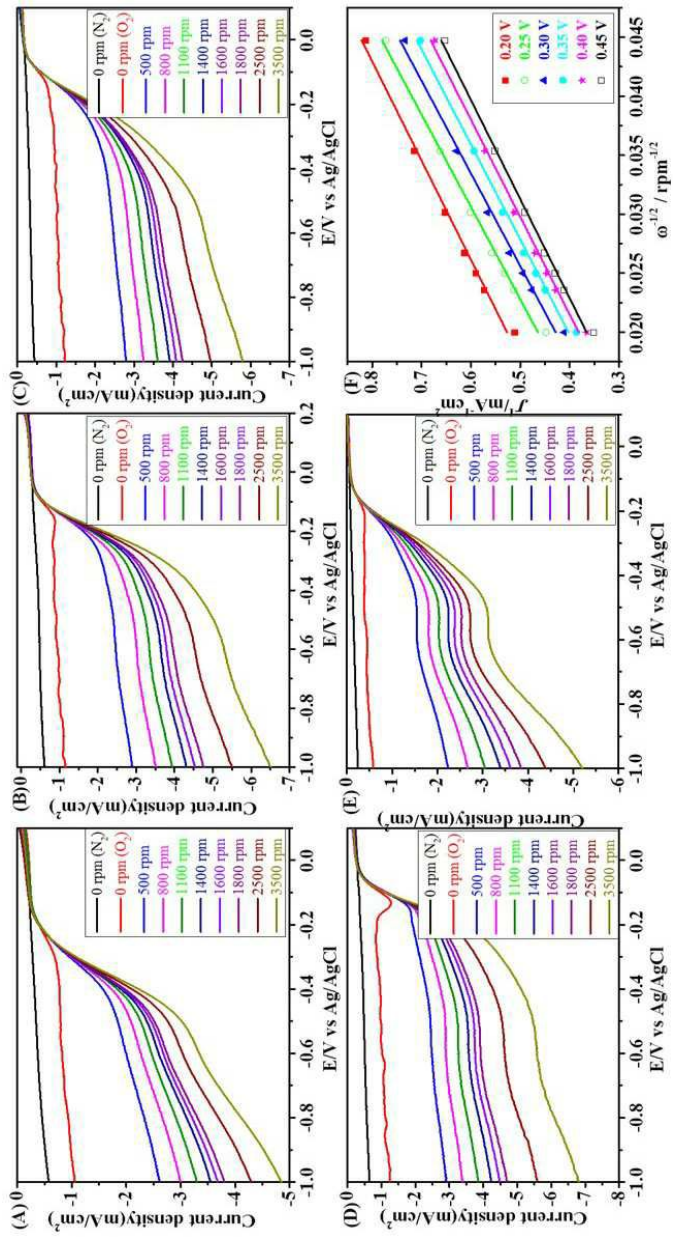
도면7



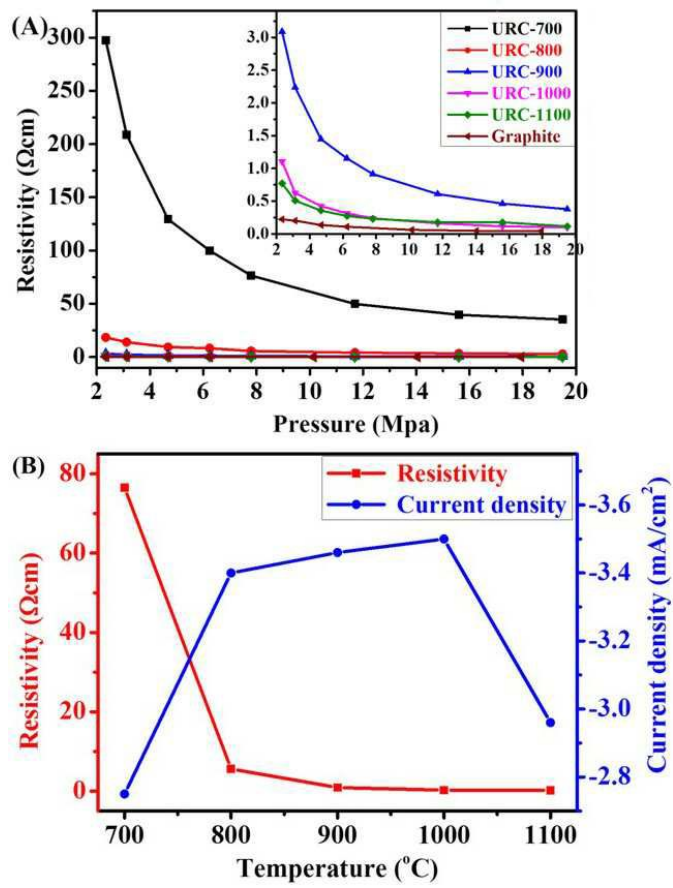
도면8



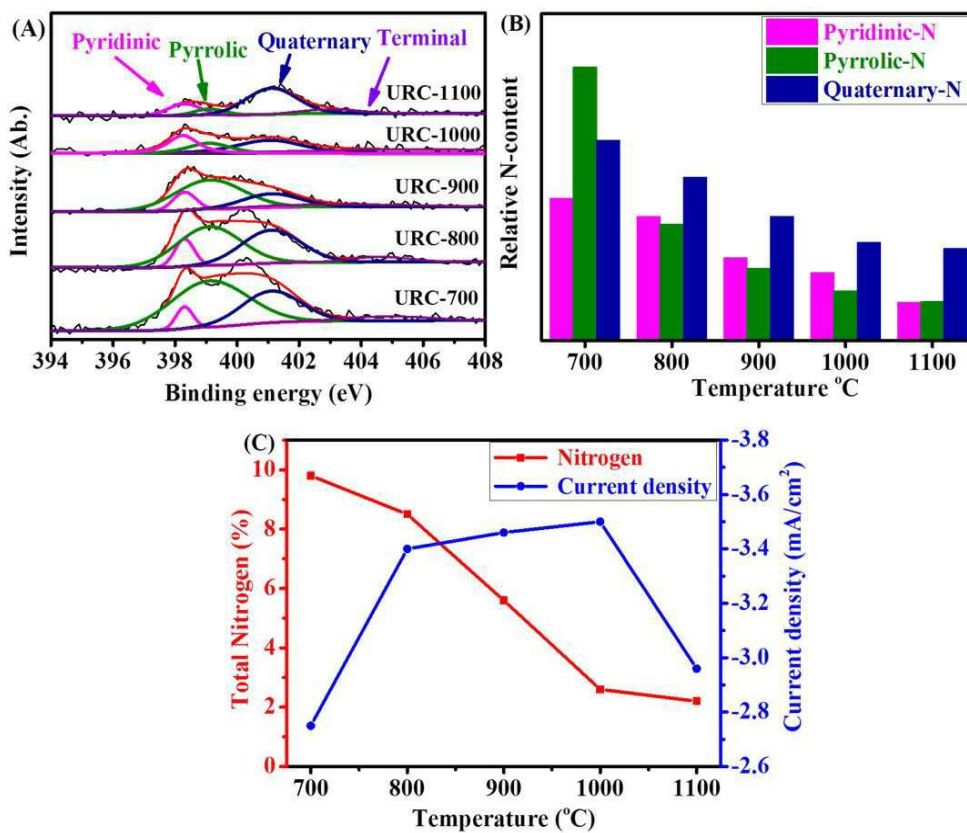
도면9



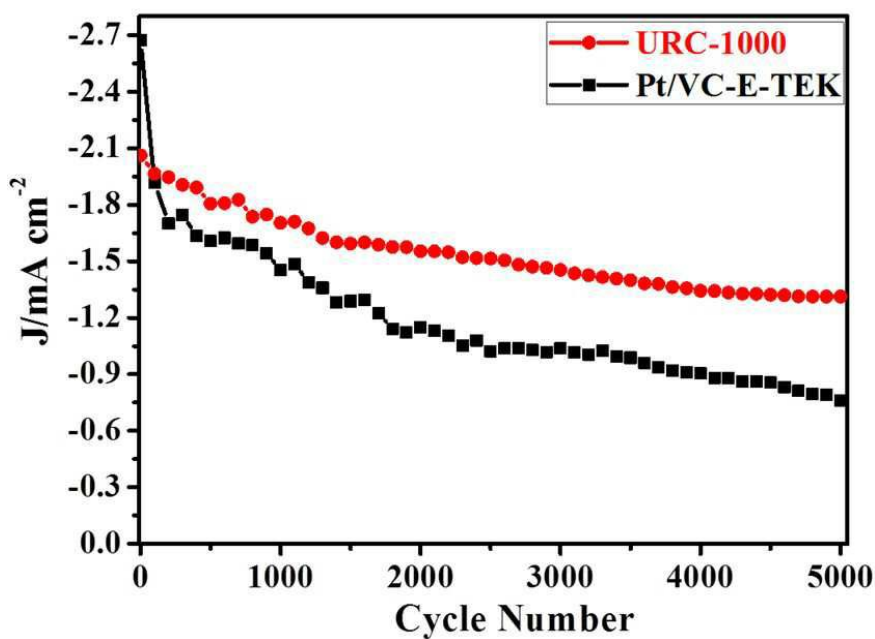
도면10



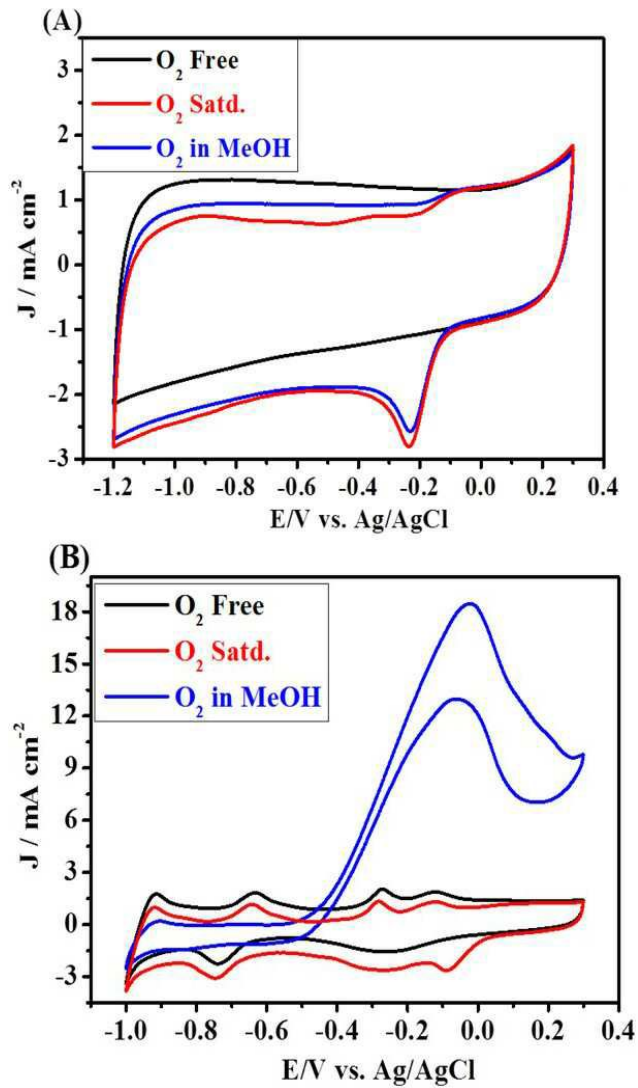
도면11



도면12



도면13



【심사관 직권보정사항】

【직권보정 1】

【보정항목】 청구범위

【보정세부항목】 청구항 14

【변경전】

제1항 내지 제8항

【변경후】

제1항 내지 제6항, 제8항