



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2025-0103010
(43) 공개일자 2025년07월07일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C22B 11/00 (2006.01) C22B 3/44 (2006.01)
H01M 10/54 (2006.01)
(52) CPC특허분류
C22B 11/042 (2013.01)
C22B 3/44 (2021.05)
(21) 출원번호 10-2023-0195308
(22) 출원일자 2023년12월28일
심사청구일자 2023년12월28일

(71) 출원인
한국기술교육대학교 산학협력단
충청남도 천안시 동남구 병천면 충절로 1600 (한국기술교육대학교내)
(72) 발명자
조남준
충청남도 천안시 서북구 불당25로 8 불당호반써밋
플레이스센터시티 306동 2006호
신태섭
충청남도 천안시 서북구 불당24로 9 104동 1706호
(74) 대리인
특허법인태동

전체 청구항 수 : 총 4 항

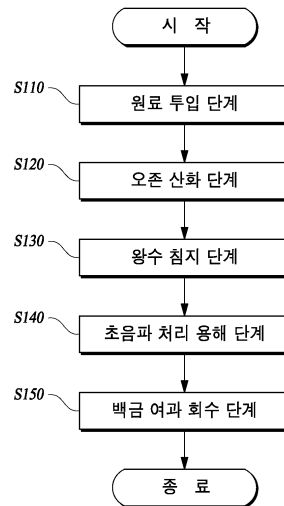
(54) 발명의 명칭 폐 막전극집합체에 함유된 백금의 회수방법

(57) 요약

개시된 본 발명의 폐 막전극집합체에 함유된 백금의 회수 방법은, 폐 막전극집합체를 투입하는 원료투입단계, 원료투입단계에서 투입된 폐 막전극집합체의 탄소 지지층을 오존으로 이용하여 CO₂로 산화시키는 단계 및 산화단계 후 잔여물을 왕수에 침지하는 단계를 포함한다.

이로써, 오존 산화를 통해 탄소 지지체가 CO₂로 산화후 기화되어 제거됨에 따라 폐기물 발생이 적고 왕수와 백금의 접촉을 향상시켜 순도가 높은 백금을 우수한 수율로 회수하는 탁월한 효과를 나타낸다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

H01M 10/54 (2023.01)

Y02W 30/84 (2020.08)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	1345370650
과제번호	LINC3.0-2023-31
부처명	교육부
과제관리(전문)기관명	한국연구재단
연구사업명	산학연협력고도화지원
연구과제명	3단계산학연협력선도대학육성사업(LINC3.0)(0.5)
기 여 율	1/1
과제수행기관명	한국기술교육대학교
연구기간	2023.03.01 ~ 2024.02.29

명세서

청구범위

청구항 1

폐 막전극접합체를 투입하는 원료투입단계;

상기 원료투입단계에서 투입된 폐 막전극접합체의 탄소 지지층을 오존으로 이용하여 CO₂로 산화시키는 단계; 및
상기 산화단계 후 잔여물을 왕수에 침지하는 단계;를 포함하는 폐 막전극접합체에 함유된 백금의 회수 방법.

청구항 2

청구항 1에 있어서,

상기 왕수에 침지하는 단계 후, 초음파를 통해 백금을 왕수로 용해시키는 단계;

및

왕수에 용해된 백금을 여과시켜 회수하는 단계;를 포함하는 폐 막전극접합체에 함유된 백금의 회수 방법.

청구항 3

청구항 1에 있어서,

상기 원료투입단계는 왕수 100 중량부 대비 폐 막전극접합체 20 내지 40 중량부가 투입되는 것을 특징으로 하는 폐 막전극접합체에 함유된 백금의 회수방법.

청구항 4

청구항 3에 있어서,

상기 원료투입단계는 왕수 100 중량부 대비 폐 막전극접합체 25 내지 35 중량부가 투입되는 것을 특징으로 하는 폐 막전극접합체에 함유된 백금의 회수방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 폐 막전극접합체에 함유된 백금의 회수방법에 관한 것으로, 더욱 상세하게는 탄소 지지층을 오존으로 산화시켜 순도가 높은 백금을 우수한 수율로 회수할 수 있도록 하는 폐 막전극접합체에 함유된 백금의 회수방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0003] 종래의 연료전지에 적용되는 막전극접합체(MEA, Membrane Electrode Assembly)는 40 내지 60%의 높은 함량으로 백금을 함유하고 있는데, 연료전지 사용에 따라 막전극접합체가 열화되어 연료전지의 성능이 저하되게 된다.

[0004] 성능이 저하된 연료전지는 폐기처분 되는데, 상기 막전극접합체에 함유된 백금은 매우 고가의 소재이며, 자원 재활용, 희소금속 유출 방지, 연료전지 생산단가 절감등의 목적을 이루기 위해서 폐기처분 되는 막전극접합체 내에 백금 성분을 회수하고자 하는 시도가 이루어지고 있다.

[0005] 일반적으로 막전극접합체는 아래 도 2에 나타난 것처럼, 촉매전극 제작시에 백금을 함유한 촉매(Pt/C)와 이오노머 및 분산용매를 혼합한 촉매 슬러리를 열압착하여 제조하기 때문에, 막전극접합체에 함유된 백금을 회수하기 위해서는 이오노머, 분산용매 등으로부터 백금을 분리해낼 수 있어야 한다.

[0006] 종래에는 상기의 목적을 달성하기 위해 이오노머 및 분산용매를 특정 용매에 용해시킨 이후 왕수로 용해시켜 백

금을 회수하는 방법이 이루어졌으며, 상세하게는 용매 용해 → 용매 세척 → 왕수용해 → 여과 등의 과정으로 이루어졌는데, 이 방법은 특정 용매에 이오노머와 분산용매가 100% 제거되지 않는 문제점이 있었다.

[0007] 또한, 폐연료전지를 고온에서 탄화시켜 남은 재를 왕수로 용해시켜 백금을 회수하고자 하는 방법이 이루어졌으며, 상세하게는 탄화(900℃) → 수거 → 왕수용해 → 여과의 과정으로 이루어졌는데, 이 방법은 고온 탄화과정에 에너지가 많이 소요되고, 공정의 특성으로 인해 시간이 많이 소요되어 생산성이 낮은 문제점이 있었다.

선행기술문헌

특허문헌

[0009] (특허문헌 0001) 한국특허등록 제10-1312086호(2013.09.17.)
(특허문헌 0002) 한국특허등록 제10-1371078호(2014.02.28.)

발명의 내용

해결하려는 과제

[0010] 본 발명은 "열화 연료전지로부터의 백금 회수 및 재합성 Pt/C 촉매를 이용한 연료전지 제조기술 개발"의 연구결과로 안출된 것으로서, 본 발명의 목적은 초음파 및 오존산화 공정을 활용하여 순도가 높은 백금을 우수한 수율로 회수할 수 있도록 하는 폐 막전극접합체에 함유된 백금의 회수방법을 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

[0011] 본 발명의 목적은 폐 막전극접합체를 투입하는 원료투입단계; 상기 원료투입단계에서 투입된 폐 막전극접합체의 탄소 지지층을 오존으로 이용하여 CO₂로 산화시키는 단계; 및 상기 산화단계 후 잔여물을 왕수에 침지하는 단계;를 포함하는 폐 막전극접합체에 함유된 백금의 회수 방법을 통해 달성된다.

[0013] 또한, 본 발명의 바람직한 특징에 따르면 상기 왕수에 침지하는 단계 후, 초음파를 통해 백금을 왕수로 용해시키는 단계; 및 왕수에 용해된 백금을 여과시켜 회수하는 단계;를 포함한다.

[0015] 또한, 상기 원료투입단계는 왕수 100 중량부 대비 폐 막전극접합체 20 내지 40 중량부가 투입되는 것이 바람직하다.

[0017] 또한, 보다 더 바람직하게는 상기 원료투입단계는 왕수 100 중량부 대비 폐 막전극접합체 25 내지 35 중량부가 투입된다.

발명의 효과

[0019] 본 발명에 따른 폐 막전극접합체에 함유된 백금의 회수방법은 단순하고 안전한 공정을 통해 순도가 높은 백금을 우수한 수율로 회수하는 탁월한 효과를 나타낸다.

[0020] 또한, 오존 산화를 통해 탄소 지지체가 CO₂로 산화후 기화되어 제거됨에 따라 폐기물 발생이 적고 왕수와 백금의 접촉을 향상시킬 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0022] 도 1은 본 발명에 따른 폐 막전극접합체에 함유된 백금의 회수방법을 나타낸 순서도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0023] 이하에는, 본 발명의 바람직한 실시예와 각 성분의 물성을 상세하게 설명하되, 이는 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자가 발명을 용이하게 실시할 수 있을 정도로 상세하게 설명하기 위한 것이지, 이로 인해 본 발명의 기술적인 사상 및 범주가 한정되는 것을 의미하지는 않는다.

[0025] 본 발명에 따른 폐 막전극접합체에 함유된 백금의 회수방법은 폐 막전극접합체를 투입하는 원료투입단계(S110), 상기 원료투입단계(S110)에서 투입된 폐 막전극접합체의 탄소 지지층을 오존으로 이용하여 CO₂로 산화시키는 단계(S120) 및 산화단계(S120) 후 잔여물을 왕수에 침지하는 단계(S130)를 포함한다.

[0027] 상기 원료투입단계(S110)는 탄소 지지층을 포함하는 폐 막전극접합체를 투입하는 단계로, 왕수 100 중량부 대비 폐 막전극접합체 20 내지 40 중량부가 투입되는 것이 바람직하며, 왕수 100 중량부 대비 폐 막전극접합체 25 내지 35 중량부가 투입되는 것이 더욱 바람직하다.

[0028] 상기 왕수 대비 폐 막전극접합체의 함량이 20 중량부 미만이면 폐 막전극접합체에 함유된 백금 회수공정의 효율성이 지나치게 저하되며, 상기 폐 막전극접합체의 함량이 40 중량부를 초과하게 되면 왕수에 의해 폐 막전극접합체가 제대로 용해되지 못할 수 있기 때문에 바람직하지 못하다.

[0030] 단계(S123)을 거치면, 탄소 지지층이 오존 산화를 통해 CO₂로 산화되면서 기화되어 제거되기 때문에 폐기물 발생이 적고 단계(S130)에서 산화 단계(S123) 후 잔여물을 왕수에 침지하게 되는데 이때 왕수와 백금의 접촉을 향상시킬 수 있다.

[0032] 즉, 왕수와의 접촉면적이 향상되어 폐 막전극접합체가 왕수에 빠르게 용해되기 때문에 백금 회수 공정의 효율성이 향상된다.

[0034] 또한, 단계 S120 및 S130에서 왕수와의 접촉면적이 향상된 상태에서, 단계S140에서 초음파를 통해 백금을 왕수에 빠르게 용해될 수 있도록 하여 백금 회수 공정의 효율성을 보다 더 향상시킬 수 있다.

[0036] 이후, 백금을 여과시켜 회수하는 단계(S150)는 상기 용해 단계(S140)를 통해 제조된 혼합물을 여과하는 단계로, 백금성분이 함유된 여과액을 회수하는 과정으로 이루어지는 것이 바람직하다.

[0037] 상기의 과정을 통해 백금성분이 함유된 여과액은 통상적인 방법으로 후가공 처리하여 여과액에 함유된 백금성분을 회수 할 수 있다.

[0038] 일 예로, 여과액의 후가공 처리는 여과액에 염산을 첨가하고 농축하여 질산을 제거하고, 질산이 제거된 용액에 염화암모늄 포화용액을 첨가하여 염화백금산암모늄 염을 생성한 후에, 상기 염화백금산암모늄 염이 포함된 용액을 여과하여 분리하고, 상기 분리된 염화백금산암모늄 염을 소성하여 최종적으로 백금을 회수하는 과정으로 이루어질 수 있다.

[0039] 더욱 상세하게는 여과액에 함유된 질산기를 제거하기 위해 염산을 넣어주면서 NO_x gas가 발생하지 않을 때까지 가열하는데, 질산기를 제거하지 않으면 후공정인 염 형성 시 수율이 낮아지기 때문이다.

[0040] 또한, 질산기가 제거된 용액을 여과하여 카본 촉매를 제거한다. 여과한 액에 10 내지 90℃ 염화암모늄 포화용액을 첨가하여 염화백금산암모늄 염을 형성시킨다.

[0041] 이때, 상기 염화암모늄 포화용액의 온도가 10℃ 이하이면 염화암모늄 포화용액의 반응성이 저하되어 불순물의 함유가 많아지며 수율 또한 낮아지고, 상기 염화암모늄 포화용액의 온도가 90℃ 이상을 나타내면 염화암모늄 포

화용액이 염화암모늄으로 석출되어 백금과의 반응성이 낮아져 불순물 함유가 증가될 수 있다.

[0042]

또한, 분리된 염화백금산암모늄 염을 여과한 후 잔여물은 700 내지 1000℃에서 1 내지 3시간 동안 소성을 하여 백금으로 환원시키게 되는데, 상기 소성온도가 700℃ 이하일 경우 일부만 환원이 일어나며, 1000℃ 이상일 경우 백금이 휘발하게 되기 때문에 바람직하지 못하다.

부호의 설명

[0044]

S110 ; 원료투입단계

S120 ; 오존 산화 단계

S130 ; 왕수 침지 단계

S140 : 초음파 처리 용해 단계

S150 : 백금 여과 회수 단계

도면

도면1

