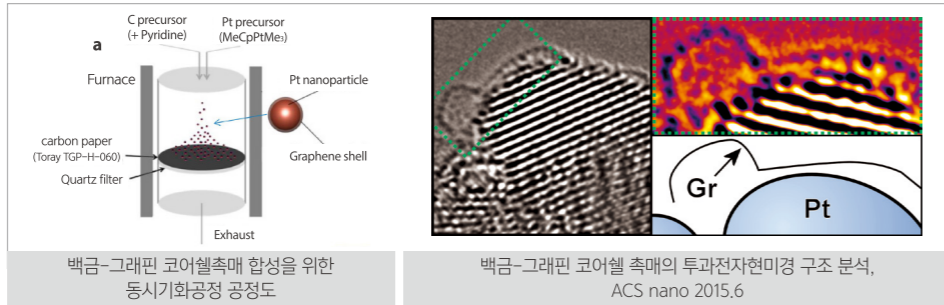


**연구책임자**  
에너지효율·소재연구본부  
에너지소재연구실  
**김희연**

## 연료전지 및 이차전지 전극의 내구성 향상을 위한 one-step 탄소층 코팅기술

연료전지용 백금계촉매 및 이차전지용 실리콘나노입자 등의 표면에 다공성 그래핀셀을 one-step 공정을 통하여 코팅하는 기술로서, 대부분의 에너지디바이스에서 성능저하의 원인이 되는 금속 입자의 응집, 부식, 탈락 등을 원천적으로 방지하여 전극의 장기안정성을 획기적으로 개선하는 기술. 해당기술은 연료전지, 개질기 등의 촉매와 이차전지 전극 소재의 내구성 향상에 효과적이며, 관련 특허와 해당 분야 최우수 저널에 결과를 게재.

### 기술의 구성도/개념도



### 기술의 주요 내용 및 특징

- 연료전지전극에 사용되는 백금계 촉매의 장기 안정성을 확보하기 위하여, 상압, 저온의 one-step 공정을 사용하여 백금 나노입자의 표면에 다공성 그래핀겹질을 코팅함으로써, 촉매 입자의 응집이나 부식, 탈락과 같은 비활성화를 근본적으로 방지할 수 있음. 또한, 이차전지의 전극 물질(실리콘 등)에 그래핀 겹질을 적용하는 경우, 충방전 반복에 따른 전극의 비활성화를 원천적으로 방지할 수 있음.
- 연려한 백금-그래핀 코어셸 구조체는 상용 촉매 이상의 초기 성능과 150% 이상 우수한 장기안정성을 나타내며, 이차전지전극(실리콘-그래핀 코어셸)에 적용하는 경우 75% 이상의 용량유지율(retention)을 나타냄.
- 기존 촉매 제조 공정에 간단한 추가 부품 설치만으로 one-step 그래핀셀 합성이 가능하며, 저온, 상압 공정으로 설치가 매우 단순하고 저렴함.
- 동시기화공정을 적용하는 경우, 기존의 복잡한 촉매제조공정(담지, 건조, 소성, 환원, 합금화)을 one-step으로 단순화할 수 있음.

### 기술의 적용처

응용분야	적용제품
연료전지전극, 이차전지 전극, 수소제조용 개질촉매, 화학공정용 촉매	화학공정용 촉매, 연료전지자동차, 전기자동차, 휴대용 전원, 특수 발전, 대면적 태양전지, 인테리어 내장재 등



**문의**  
한국에너지기술연구원  
기술사업화실

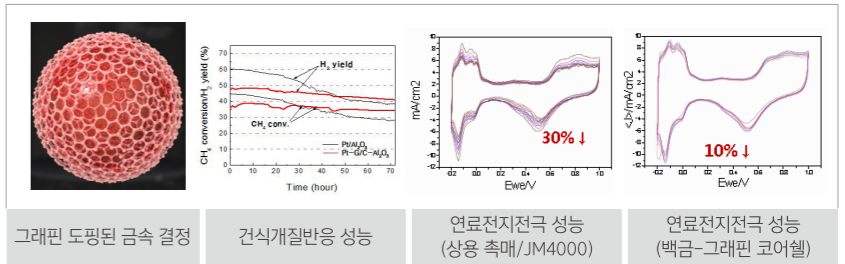
**TEL**  
042-860-3384

**E-mail**  
kier-tlo@kier.re.kr

### 기술의 비교우위성/ 기존 기술 대비 차별성

기존 기술	본 기술
<ul style="list-style-type: none"> <li>건설개질반응: Ni 촉매의 심각한 비활성화 (코크 침적)으로 인해, 장기안정성 저하</li> <li>고분자전해질연료전지: 백금촉매의 심각한 비활성화로 인해 장기안정성 저하, 고가의 백금 손실</li> <li>이차전지: 운전중 반복된 충방전에 따른 전극물질의 비활성화 및 시스템 수명저하</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>수소제조용 건설개질반응 - 상용 촉매(Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 대비 7% 이상 우수한 내구성 검증 (가속조건 @700°C, 72시간 반응)</li> <li>연료전지용 촉매 성능 (PEMFC) - 상용 촉매(JM4000, 존스매티)대비 장기안정성 150% 향상 (가속조건 @1000CV cycles)</li> <li>이차전지 전극 (리튬-실리콘 이차전지) - 75% 이상의 용량유지율 확보 (@ 50cycles)</li> </ul>

### 실험 및 실증 데이터



### » 금속촉매의 내구성 향상을 위한 다공성 그래핀 적용 기술

- 금속 코어와 다공성탄소(그래핀 셀)로 구성되어 촉매의 비활성화를 근본적으로 방지함으로써, 전극 및 시스템의 장기내구성을 극대화 함.



### 기술의 성숙도

[TRL 6: 파일럿 규모 시작품 제작 및 성능 평가]

### 금속촉매의 내구성 향상을 위한 다공성 그래핀 적용 기술

- 고효율화/대량생산 기술개발 진행
- 준 pilot 수준의 설비 구축 및 시제품 제작
- 연구결과 최우수 SCI논문 게재(ACS nano, Nano letters, Advanced Materials 등)
- 국내외 원천 특허 확보

### 지식재산권 현황

순번	발명의 명칭	출원번호	출원일자	등록번호	등록일자
1	나노탄소와 코어-셸 구조의 백금-탄소 복합체를 포함하는 연료전지용 전극의 제조방법 및 이에 의해 제조된 연료전지용 전극	10-2012-0078362 (한국)	2012.07.18	10-1436030 (한국)	2014.08.25
		CN 201310284379.9 (중국)	2013.07.08	ZL 201310284379.9 (중국)	2016.02.03
		US 13/938,643 (미국)	2013.07.10	9,172,095 (미국)	2015.10.27
2	질소도핑된 탄소 표면을 갖는 금속-탄소 하이브리드 복합체 및 그 제조방법	10-2014-0067129 (한국)	2014.06.02	10-1568247-00-00 (한국)	2015.11.05
		2015-112387 (일본)	2015.06.02	6058075 (일본)	2016.12.28
3	질소도핑된 다공성 그래핀 덮개의 형성 방법	10-2015-0075097 (한국)	2015.05.28	10-1735401 (한국)	2017.05.08
		2016-105142 (일본)	2016.05.26	-	
		15/165,776 (미국)	2016.05.26	-	

## Principal researcher

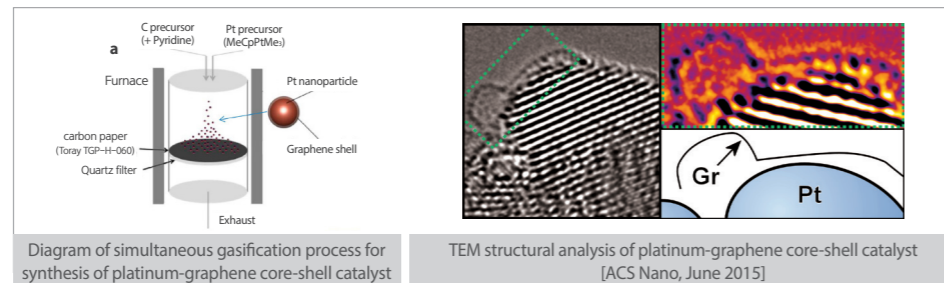
Energy Materials Laboratory of the Energy Efficiency Technologies and Materials Science Division

Kim Hee-Yeon

# One-step carbon layer coating technology for improving durability of fuel cells and secondary battery electrodes

The present technology is for coating the platinum-based catalysts for fuel cells and silicon nanoparticles for secondary batteries with porous graphene shells through 'one-step coating process'. It may greatly increase the long-term stability of electrodes by preventing the aggregation, corrosion, and detachment of catalytic metal particles. The key technologies have been published in relevant patents and on top academic journals.

## Structural Diagram/Conceptual Diagram



## Description and Characteristics of Technology

- To secure the long-term stability of platinum-based catalysts that are often used for the electrodes of fuel cells, a hot-temperature one-step process is performed in the present technology to coat the surface of the platinum nanoparticles with porous graphene shells; this fundamentally prevents inactivation of the catalyst particles caused by aggregation, corrosion or detachment. In addition, the electrode inactivation by repeated charge and discharge may be prevented fundamentally by applying the graphene shells to the electrode materials (silicon, etc.) of secondary batteries.
- The platinum-graphene core-shell structure provides good initial performance higher than that of commercial catalysts as well as a long-term stability 150% higher than that of commercial catalysts. When the platinum-graphene core-shell structure is applied to an electrode of a secondary battery (silicon-graphene core-shell), the capacity retention rate is over 75%.
- The one-step graphene-shell synthesis may be accomplished simply by applying some additional components to the existing catalyst preparation process. The installation is very simple and less expensive because the process is a low-temperature atmospheric process.
- The application of the simultaneous gasification process can simplify the conventional complicated catalyst preparation process (supporting, drying, calcination, reduction, and alloying) into a one-step process.

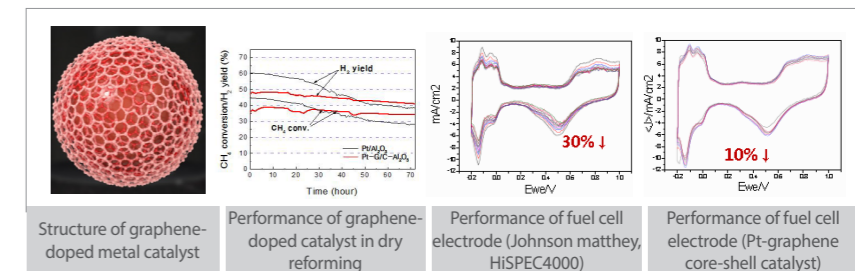
## Scope of Application

Application Fields	Products
Electrodes for fuel cells, electrodes for secondary batteries, reforming catalysts for hydrogen production, and catalysts for chemical processes	Catalysts for chemical processes, fuel cell-based vehicles, electric vehicles, mobile power sources, special power generation, large-area solar cells, interior building materials, etc.

## Comparative advantages of technology / Differentiation from existing technologies

Conventional Technology	Present Technology
<ul style="list-style-type: none"> <li>Dry reforming: The long-term stability is low due to the severe inactivation (cokes deposition) of Ni catalyst.</li> <li>Polymer electrolyte fuel cells: The long-term stability is low due to the severe inactivation of Pt catalyst, and the expensive Pt is lost.</li> <li>Secondary batteries: The electrode materials are inactivated and the system lifetime is decreased due to the repeated charge and discharge during the operation.</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>Dry reforming for hydrogen production – The durability over 7% higher than the commercial catalyst (Ni/ Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) has been demonstrated (harsh conditions @700°C, 72-hr reaction).</li> <li>Performance of catalyst for fuel cells (PEMFC) – The long-term stability is 150% higher than that of the commercial catalyst (JM4000, Johnson Matthey) (harsh conditions @1000CV cycles).</li> <li>Electrodes for secondary batteries (lithium-silicon secondary batteries) - A capacity retention rate over 75% has been secured (@ 50 cycles).</li> </ul>

## Experimental and empirical data



## Technology for applying porous graphene to improve durability of metallic catalysts

The metallic core and the porous carbon shell (graphene shell) fundamentally prevents the inactivation of catalyst to drastically increase the long-term durability of electrodes and battery systems.



## Maturity level of technology

## [TRL 6: pilot-scale prototype preparation and performance evaluation] Technology for applying porous graphene to improve durability of metallic catalysts

- R&D work is currently conducted to increase the efficiency and prepare mass production.
- A semi-pilot level facility has been established, and a prototype has been prepared.
- The research results were published in the world's best SCI journals (ACS Nano, Nano Letters, Advanced Materials, etc.)
- Domestic and international patents have been approved as source technologies.

## Current status of intellectual property rights

No.	Title of Invention	Application Number	Application Date	Registration Number	Registration Date
1	Method for preparing an electrode for fuel cell comprising nanocarbon and core-shell structure of platinum-carbon composite and the electrode for fuel cell prepared by the same	10-2012-0078362 (Republic of Korea)	2012.07.18	10-1436030 (Republic of Korea)	2014.08.25
		CN 201310284379.9 (China)	2013.07.08	ZL 201310284379.9 (China)	2016.02.03
		US 13/938,643 (US)	2013.07.10	9,172,095 (US)	2015.10.27
2	Metal-carbon hybrid composite having nitrogen-doped carbon surface and method for manufacturing the same	10-2014-0067129 (Republic of Korea)	2014.06.02	10-1568247-00-00 (Republic of Korea)	2015.11.05
		2015-112387 (JP)	2015.06.02	6058075 (JP)	2016.12.28
3	Method for forming nitrogen-doped porous graphene envelope	10-2015-0075097 (Republic of Korea)	2015.05.28	10-1735401 (Republic of Korea)	2017.05.08
		2016-105142 (JP)	2016.05.26	-	
		15/165,776 (US)	2016.05.26	-	

## Inquiries

Business Development Team of the Korea Institute of Energy Research

## Tel

042-860-3384

## E-mail

kier-tlo@kier.re.kr