



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2023-0095920  
(43) 공개일자 2023년06월29일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
D21F 11/14 (2006.01) D21F 1/44 (2006.01)  
D21F 11/08 (2006.01)
- (52) CPC특허분류  
D21F 11/14 (2013.01)  
D21F 1/44 (2013.01)
- (21) 출원번호 10-2023-7008006
- (22) 출원일자(국제) 2021년08월31일  
심사청구일자 없음
- (85) 번역문제출일자 2023년03월07일
- (86) 국제출원번호 PCT/EP2021/025327
- (87) 국제공개번호 WO 2022/048794  
국제공개일자 2022년03월10일
- (30) 우선권주장  
10 2020 005 480.3 2020년09월07일 독일(DE)

- (71) 출원인  
기체케+데브리엔트 커런시 테크놀로지 게엠베하  
독일 뮌헨 81677 프린스레겐텐스트라세 161
- (72) 발명자  
메이어 칼하인츠  
독일 88167 그뤼넨바흐 에브라쇼펜 28  
탄트셔 알렉산더  
독일 01259 드레스덴 주르 엘빈셀 16
- (74) 대리인  
김경희

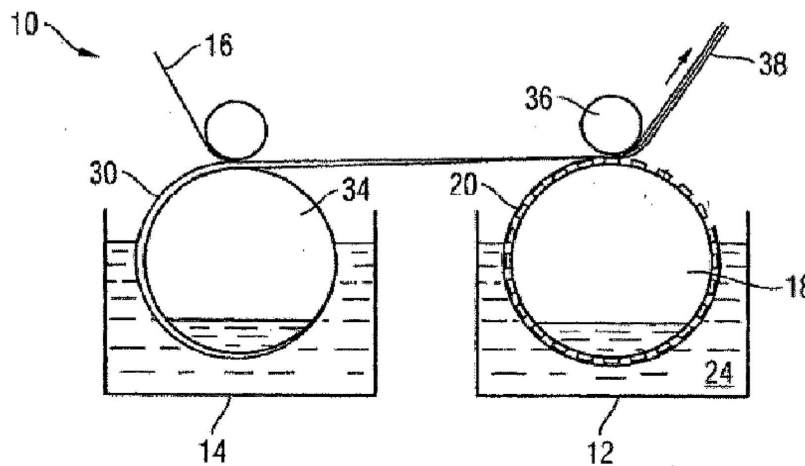
전체 청구항 수 : 총 15 항

(54) 발명의 명칭 연료 전지용 기체 확산층을 생성하기 위한 그린 페이퍼

(57) 요약

본 발명은 연료 전지용 기체 확산층(GDL)을 생성하기 위한 그린 페이퍼에 관한 것이다. 본 발명은 또한 연료 전지용 기체 확산층(GDL)을 생성하기 위한 그린 페이퍼를 생산하는 프로세스에 관한 것이다. 본 발명에 있어서, 상기 그린 페이퍼는 적어도 하나의 제1, 워터마킹된 페이퍼 웹을 포함한다. 이 워터마크는 상기 그린 페이퍼로부터 생성되는 상기 기체 확산층(GDL)의 유동장 또는 기체 분배 구조를 위한 패턴을 형성한다. 매우 바람직하게 상기 제1 페이퍼 웹은 금속 분말 및/또는 금속 섬유들과 혼합된다. 최종적 GDL은 디바인더링, 소결, 코팅, 원자층 증착(ALD - 원자층 증착) 및 가능하다면 추가 작동 단계 후에 형성된다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

*D21F 11/08* (2013.01)

*Y02E 60/50* (2020.08)

---

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

연료 전지용 기체 확산층(GDL)을 생성하기 위한 그린 페이퍼에 있어서,

상기 그린 페이퍼는 적어도 하나의 제1 페이퍼 웹을 가지고, 여기에 적어도 하나의 워터마크가 만들어지고, 상기 워터마크는 상기 그린 페이퍼로부터 생성되는 상기 기체 확산층(GDL)의 유동장을 위한 패턴을 형성하는 것을 특징으로 하는, 그린 페이퍼.

#### 청구항 2

제 1 항에 있어서, 상기 워터마크가 참 워터마크일 때, 상기 페이퍼의 두께는 변하지만, 상기 페이퍼의 밀도는 변하지 않고, 및/또는 상기 워터마크가 거짓 워터마크일 때, 상기 페이퍼의 두께는 감소되지만 동시에 상기 페이퍼의 밀도는 증가되는 것을 특징으로 하는, 그린 페이퍼.

#### 청구항 3

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서, 상기 그린 페이퍼는 제1 페이퍼 웹 및 적어도 하나의 제2 페이퍼 웹을 가지는 것을 특징으로 하는, 그린 페이퍼.

#### 청구항 4

제 1 항 내지 제 3 항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 워터마크는 적어도 하나의 채널의 형태인 홈으로 구성되는 것을 특징으로 하는, 그린 페이퍼.

#### 청구항 5

제 1 항 내지 제 4 항 중 어느 한 항에 있어서, GDL에서와 같이 등록 표시들, 위치지정 보조도구, 중심 보조도구 또는 통로들의 시작 지점들을 생성하기 위해 상기 워터마크가 패턴을 전혀 또는 사실상 거의 가지고 있지 않는 것을 특징으로 하는, 그린 페이퍼.

#### 청구항 6

제 1 항 내지 제 5 항 중 어느 한 항에 있어서, 연료 전지의 애노드 측 및 캐소드 측의 워터마크의 패턴들은 동일하지 않지만, 대신 영역에 있어서 그리고 물질-두께 방향으로 정확히 거울-대칭인 것을 특징으로 하는, 그린 페이퍼.

#### 청구항 7

연료 전지용 기체 확산층(GDL)을 생성하기 위한 그린 페이퍼를 생산하기 위한 프로세스에 있어서, 바람직하게 금속 분말 및/또는 금속 섬유들과 혼합된, 적어도 하나의 제1 페이퍼 웹이 생성되고, 상기 그린 페이퍼로부터 생성되는 상기 기체 확산층(GDL)의 유동장을 위한 패턴을 형성하기 위해, 적어도 하나의 워터마크가 상기 페이퍼 웹에 만들어지는 것을 특징으로 하는, 프로세스.

#### 청구항 8

제 7 항에 있어서, 상기 워터마크가 참 워터마크에 의해 형성될 때, 상기 페이퍼의 두께는 변하지만, 상기 페이퍼의 밀도는 변하지 않고, 및/또는 상기 워터마크가 거짓 워터마크에 의해 형성될 때, 상기 페이퍼의 두께는 감소되지만 동시에 상기 페이퍼의 밀도는 증가되는 것을 특징으로 하는, 프로세스.

#### 청구항 9

제 7 항 또는 제 8 항에 있어서, 제1 페이퍼 웹(20)이 형성되고 제2 페이퍼 웹(30)이 형성되고, 여전히-습윤 상태에 있는 상기 웹(30)은 상기 제1 페이퍼 웹(20)과 함께 모여 단단히 결합되게 되고, 이때 상기 제1 페이퍼 웹(20)과 상기 제2 페이퍼 웹(30)은 함께 상기 GDL을 위한 그린 페이퍼를 형성하는 것을 특징으로 하는,

프로세스.

**청구항 10**

제 9 항에 있어서, 상기 제1(20) 및/또는 제2 페이퍼 웹(30)은 원통형 초지기(12, 14)에서 생성되는 것을 특징으로 하는, 프로세스.

**청구항 11**

제 9 항 또는 제 10 항에 있어서, 상기 제1(20) 및/또는 제2 페이퍼 웹(30)은 짧은 형성기(40)에서 생성되고, 여기서 페이퍼 스톱은 노즐을 통해 원통형 와이어(44)에 적용되는 것을 특징으로 하는, 프로세스.

**청구항 12**

제 9 항 내지 제 11 항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 제1 페이퍼 웹(20)은 상기 제2 페이퍼 웹(30)보다 더 높은 밀도를 가지고, 이때 상기 제1 페이퍼 웹은 예를 들어 3 g/cm<sup>3</sup> 내지 10 g/cm<sup>3</sup>의 밀도를 가지고 상기 제2 페이퍼 웹은 1 g/cm<sup>3</sup> 내지 5 g/cm<sup>3</sup>의 밀도를 가지는 것을 특징으로 하는, 프로세스.

**청구항 13**

제 12 항에 있어서, 상기 제1 페이퍼 웹(20)은 상기 제2 페이퍼 웹(30)보다 더 미세한 종이 섬유 슬러리에 의해 형성되는 것을 특징으로 하는, 프로세스.

**청구항 14**

제 9 항 내지 제 13 항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 제1 페이퍼 웹(20)은 상기 그린 페이퍼로부터 생성되는 기체 확산 층(GDL) 내에서, 바람직하게, 플래티늄인, 촉매 물질로 코팅된 막(CL)을 위한 확산층을 형성하고, 상기 제2 페이퍼 웹(30)은 상기 그린 페이퍼로부터 생성되는 기체 확산층(GDL) 내에서 유동장을 갖는 분배 층을 형성하는 것을 특징으로 하는, 프로세스.

**청구항 15**

양성자 교환 막 연료 전지(PEMFC)에 있어서, 양성자 교환 막 전해질 전지(PEMEC)에 있어서, 전해질 전지들에 있어서 또는 기체/전력/반응제 분배를 위해 다공성의 전도성 물질을 대응되게 필요로 하는 다른 P2X 기술(power-to-X technology)에 있어서 제 1 항 내지 제 14 항 중 어느 한 항에 따른 그린 페이퍼로부터 생성되는 기체 확산층(GDL)의 사용.

**발명의 설명**

**기술 분야**

[0001] 본 발명은 연료 전지용 기체 확산층(GDL)을 생성하기 위한 그린 페이퍼에 관한 것이다. 본 발명은 추가적으로 연료 전지용 기체 확산층(GDL)을 생성하기 위한 그린 페이퍼를 생산하는 프로세스에 관한 것이다.

**배경 기술**

[0002] 고분자 전해질 연료 전지라고도 지칭되는, PEMFC(Proton Exchange Membrane Fuel Cell) 방식의 연료 전지의 경우에 있어서, 촉매로서 백금으로 코팅된 막(CL 또는 촉매층이라고도 지칭됨)으로의 기체의 분배는 BPP(분리판, Bipolar Plate)와 GDL(기체 확산층, Gas Diffusion Layer)을 통해 달성된다. 두 개의 분리판 사이의 전체 구성은 MEA(막-전극 접합체, Membrane-Electrode Assembly)라고도 지칭된다.

[0003] 수소와 산소의 촉매 산화 하에서, 연료 전지는 전력, 수증기 및 열을 생성한다.

[0004] 자동차 부문에 있어서, 예를 들어 탄소섬유, 및 코팅된 강철 BPP와 같은 섬유 물질로부터 생산되는 GDL은 이제 확립되었다. 섬유 물질은 여기서 직/편직 직물로서 또는 종이 기술에 의해 제조되는 섬유 매트로서 구현될 수 있고, 이 매트는 예를 들어 DE 10 2008 042 415 B3로부터 알려져 있다. 이러한 물질은 또한 2 가지 플라이들(ply)로 구성될 수 있다: CL에 접하는 미세한 플라이, 및 BPP 및 유동장(flow field)에 접하는 거친 플라이.

- [0005] 종이 기술에 의해 제조되는 섬유 매트는 그린 페이퍼 또는 소결 페이퍼(sinter paper)로 지칭되고, 후속 작업 단계들 중 하나에서 디바인더 및/또는 소결되어 GDL로 제공되도록 추가-처리된다.
- [0006] 탄소 섬유에 기초하여 GDL을 제조할 때의 특별한 단점은 탄소 섬유 및 그 추가 처리가 상대적으로 높은 비용과 관련있다는 것이다. 나아가, 탄소 섬유는 압력에 민감하여, 섬유가 파손될 수 있고, 그후 CL/PEM에 손상을 가져올 수 있다. 나아가, 탄소 섬유는 구부러지거나 부풀어 올라서, 그렇게 함으로써, BPP의 채널을 관통하여, 기체 및 물의 일시적인 흐름을 감소시키고 연료 전지의 효율성을 손상시키게 된다. 나아가, GDL 공극률의 조정가능성에는 한계가 있어, 거친 공극률 및 미세한 공극률이 조합된 2-층 GDL에 있어서, 적어도 2 가지 추가적인 작업 단계들이 필요하다.
- [0007] 마지막으로, 종래 기술에서 알려진 GDL은 패터닝 가능성을 제공하지 않기 때문에, 유동장은 BPP에 의해 완전히 형성되어야 한다. 이 목적을 위해, BPP가 엠보싱되어야 하거나 또는 유동장을 위한 기체 분배 구조 또는 패터닝을 달성하기 위해 그린 페이퍼가 처리되어야 한다. 이것은 일반적으로, 별도의, 비용이 드는, 불편한 절차이다.

**발명의 내용**

- [0008] 따라서, 본 발명의 기저에 깔린 목적은 연료 전지용 기체 확산층(GDL)을 생성하기 위한 일반 그린 페이퍼 및, 연료 전지용 기체 확산층(GDL)을 생성하기 위한 그린 페이퍼를 생산하기 위한 일반 프로세스를 개발하는 것이고, 이러한 방식으로 종래 기술의 단점이 제거된다.
- [0009] 이 목적은 독립항들의 특징들에 의해 달성된다.
- [0010] 본 발명의 개선들은 종속항들의 주제들이다.
- [0011] 본 발명에 있어서, 상기 그린 페이퍼는 적어도 하나의 제1 페이퍼 웹을 가지고, 여기에 적어도 하나의 워터마크가 만들어진다. 이 워터마크는 상기 그린 페이퍼로부터 생성되는 상기 기체 확산층(GDL)의 유동장 또는 기체 분배 구조를 위한 패터닝을 형성한다. 특히 바람직하게는 상기 제1 페이퍼 웹은 금속 분말 및/또는 금속 섬유들과 혼합된다. 최종적 GDL은 디바인더링, 소결, 코팅, 원자층 증착(ALD - 원자층 증착) 및, 선택적으로, 추가 작동 단계 후에 형성된다.
- [0012] 본 발명은 나아가 기체 확산층(GDL)을 생성하기 위한 그린 페이퍼를 생산하기 위한 프로세스에 관한 것으로서, 이때 바람직하게 금속 분말 및/또는 금속 섬유들과 혼합된, 적어도 하나의 제1 페이퍼 웹이 생성되고, 여기에 적어도 하나의 워터마크가 만들어진다. 이 페이퍼 웹은 열 ALD 프로세스를 이용해, 및 선택적으로, 최종적 GDL을 형성하기 위한 추가 작동 단계들에 의해, 디바인더링, 소결, 코팅, 원자층 증착(ALD - 원자층 증착)에 의해 후속 처리된다.
- [0013] 소결 후, 그린 페이퍼의 모든 유기 성분들은 열분해되어 더 이상 GDL에 존재하지 않는다: GDL은 거의 전적으로 금속 프레임워크로 구성된다. 현재의 관점에 따르면, 금속 프레임워크의 공극률은 특히 페이퍼 웹들의 섬유 밀도에, 금속 분말들 및/또는 금속 섬유들 및 첨가된 첨가제들의 (입자) 크기에 따라 달라진다.
- [0014] BPP의 비싸고 불편한 엠보싱 또는 그린 페이퍼의 후처리 또는 그린 페이퍼로부터 생성되는 GDL이 제거되거나 또는 적어도 더 간단하게 구현될 수 있는 이러한 방식으로, 그린 페이퍼의 페이퍼 웹에 워터마크의 도입에 의해, 제지(papermaking)에 의해 생산되는 그린 페이퍼가 패터닝될 수 있다는 사실이 놀랍게 드러났다.
- [0015] 본 발명에 있어서, 후속하는 유동장은 별도의 작업 동작 없이, 대응하는 워터마크를 초지기(paper machine)의 원통형 와이어 상의 워터마크 플라이에 통합함으로써, 그린 페이퍼에 통합된다. 이 경우에 있어서, 특별한 비용 및 복잡도 없이, 디자인에 의존하는 워터마크 스크린의 패터닝을 통해, 페이퍼의 연관된 두께 변조를 이용해, 유동장 채널들의 원하는 형태 및 단계적 차이(gradation)가 달성될 수 있다. 패터닝의 해상도를 증가시키기 위해, 예를 들어 EP 1432868 A1 또는 WO 2014/040706 A1으로부터 알려진 바와 같은, 고해상도 또는 다단계 워터마크를 채용하는 것 또한 가능하다.
- [0016] 이 발명의 의미에서의 워터마크는 상기 페이퍼의 두께는 변하지만, 상기 페이퍼의 밀도는 변하지 않는 참 워터마크(true watermark)이다. 이 경우에 있어서의 페이퍼는 페이퍼의 밀도는 모든 영역들에서 동일하지만, 인접한 영역들보다 더 큰 및/또는 더 작은 두께를 가지는 영역들을 가진다. 한편 이 종류의 워터마크는 원통형 와이어에 하강부들(depressions) 또는 상승부들(elevations)을 도입함으로써, 제지 동안 페이퍼 웹에서 만들어질 수 있는데, 예를 들어, 더 많은 또는 더 작은 양의 페이퍼 섬유들이 펄프에서 페이퍼의 생성 동안 이 하강부들 또

는 상승부들에 축적된다. 또는, 워터마크는 페이퍼의 부분들을 제거함으로써 - 예를 들어, 기계적으로 밀링에 의해 또는 레이저 가공에 의해, 이후에 페이퍼 웹에 만들어질 수 있다.

- [0017] 또는, 거짓 워터마크(false watermark) 또한 가능한데, 여기서 페이퍼 웹은, 여전히 습윤 상태에 있는데, 페이퍼 웹이 예를 들어, 원통형 와이어로부터 제거된 후 엠보싱 절차에 의해 엠보싱된다. 이 종류의 워터마크는 또한 덴디 롤 워터마크로 지칭된다. 엠보싱은 페이퍼의 두께를 감소시키지만, 동시에 페이퍼의 밀도가 증가된다. 종이 섬유들은 이로써 치밀해지거나 또는 압축된다. 이 치밀화의 장점은 채널의 선행 영역에서도 촉매층(CL) 방향으로 GDL을 통한 과도한 기체 확산을 방지하고, 이에 따라 보다 더 균일한 기체 분배를 보장하는 데 있다.
- [0018] 특히 바람직하게, 참 워터마크 및 거짓 워터마크는, 예를 들어 참 워터마크에 의한 부분들 및 거짓 워터마크에 의한 다른 부분들을 형성함으로써, 서로 결합될 수 있다.
- [0019] 다른 바람직한 일 실시예에 따르면, 상기 그린 페이퍼는 제1 페이퍼 웹 및 적어도 하나의 제2 페이퍼 웹으로 구성된다. 이 경우에 있어서 그린 페이퍼는 상기 제1 페이퍼 웹 및 적어도 하나의 제2 페이퍼 웹으로부터 형성된다. 여전히-습윤 상태에 있는 상기 제2 페이퍼 웹은 상기 제1 페이퍼 웹과 함께 모여 단단히 결합되게 된다. 이 경우에 있어서 상기 제2 및/또는 추가의 페이퍼 웹 또한 워터마크를 가질 수 있다.
- [0020] 상기 제1 및/또는 적어도 하나의 제2 페이퍼 웹은 여기서 원통형 초지기에서 생성될 수 있다. 또는, 상기 제1 및/또는 적어도 하나의 제2 페이퍼 웹은 또한 짧은 형성기(short former)에서 생성될 수 있는데, 여기서 페이퍼 스톱은 노즐을 통해 원통형 와이어에 적용된다. 이러한 생산 프로세스들은 WO 2006/099971 A2로부터, 은행권 또는 신분증과 같은, 보안 문서들 또는 유가 문서들의 생산에 대해 알려져 있고, 또한 적어도 하나의 페이퍼 웹으로부터 GDL을 생성하기 위한 본 발명에 있어서 바람직한 프로세스들이다.
- [0021] 따라서, 하나의 작업 작동에 있어서, 금속 분말 및/또는 금속 섬유들로 많이 채워진 그린 페이퍼가 형성되고, DE 10 2008 042 415 B3에 따라 적어도 2 가지의 다른 제제들(formulations)로 처리되어 다른 특성들을 갖는 결합된 그린 페이퍼가 제공된다. 연료 전지에 있어서 이것들은, 예를 들어 더 미세한 기공들을 갖는 얇은 플라이 및 더 거친 기공들을 갖는 더 두꺼운 플라이이다. 물론 공극률(porosity)도 2 가지 페이퍼 웹들 간에 다를 수 있다.
- [0022] 나아가, 특히 유리하게는, 그린 페이퍼가 2 가지 페이퍼 웹들로 구성되면, 각각이 워터마크를 가지고, 여기서 제1 페이퍼 웹의 워터마크 및 제2 페이퍼 웹의 워터마크의 패턴들이 동일하지 않지만, 대신 물질-두께 방향으로 그리고 그 영역에 있어서 정확히 거울-대칭이다. 달리 표현하면, 제1 페이퍼 웹의 워터마크의 패턴들은 제2 페이퍼 웹의 워터마크의 구조들에 대하여 180° 만큼 위상-천이된다. 이것은 제1 페이퍼 웹과 제2 페이퍼 웹이 워터마크에 의해 패턴닝된 그 측면들에 의해 조립될 때, 제1 페이퍼 웹의 상승부들은 제2 페이퍼 웹의 하강부들과 일치한다는 것을 의미한다. 이 실시예의 특별한 장점은, 소결 후, 제1 및 제2 페이퍼 웹들이 서로 다른 공극률을 가질 수 있다는 것이다. 예를 들어, 제1 페이퍼 웹은, 막을 향하고 있는데, 소결 후 20% 내지 75%의 더 낮은 공극률을 가지고, 제2 페이퍼 웹은 소결 후 30% 내지 90%의 더 높은 공극률을 가지고, 결과적으로 제2 페이퍼 웹은 기체에 대한 저항으로 거의 작용하지 못하고, 대신 분리판에 대하여 스페이서로서만 작용한다. 이러한 방식으로, 최적 기체 분배는 최적 적재성(optimal stackability) 및 전체 PEM 막에 대한 기계적 압력의 최적으로 균일한 분배와 결합될 수 있다. 특히 유리하게, 미세 다공층(MPL)이 제1 페이퍼 웹과 막 사이에 위치되고, 이 층은 제1 및 제2 페이퍼 웹들보다 더 거칠기가 적고 더 작은 기공들을 갖는 미세한 표면을 가진다.
- [0023] 바람직한 일 실시예에 따르면, 제1 페이퍼 웹은 제2 페이퍼 웹보다 더 높은 밀도를 가진다. 상기 제1 페이퍼 웹은 예를 들어 3 g/cm<sup>3</sup> 내지 10 g/cm<sup>3</sup>의 밀도를 가지고 상기 제2 페이퍼 웹은 1 g/cm<sup>3</sup> 내지 5 g/cm<sup>3</sup>의 밀도를 가진다.
- [0024] 특히 바람직하게 여기서 상기 제1 페이퍼 웹은 상기 제2 페이퍼 웹보다 더 미세한 종이 섬유 슬러리에 의해 형성되고, 이에 대응하여 소결 페이퍼의 이 하부영역에 더 미세한 기공들로 이어진다.
- [0025] 상기 제1 페이퍼 웹의 두께는 바람직하게 5 μm 내지 50 μm, 보다 바람직하게 10 μm 내지 20 μm이고, 상기 제2 페이퍼 웹의 두께는 50 μm 내지 400 μm, 보다 바람직하게 80 μm 내지 200 μm이다.
- [0026] 다른 바람직한 일 실시예에 따르면, 워터마크는 적어도 하나의 채널의 형태로 하강부로 구성되고, 상기 채널은 기체, 소위 연료 또는 산소를 전송하기 위해 제공된다. 이 채널은 바람직하게 페이퍼 웹의 영역에 구불구불한 형태로 구현된다. 다른 가능성들은 원-세그먼트 타입의 연결 채널들이 있는 격자 형태 또는 광선 형태의, 다중 채널들을 포함한다.

- [0027] 페이퍼 플라이들의 하나 또는 그 이상에 있어서, 상기에서 설명된 프로세스들 중 하나에 따른 물 수송을 위해 만들어지는 추가적인 채널들이 있을 수 있다. 이 채널들은 물의 균형잡힌 수송을 보장하고 또한 PEM 전지가 침수되거나 건조되지 않는, 특별한 장점을 가지는데, 이 두 가지 모두는 전지의 효율성에 부정적인 영향들을 미치지 때문이다. 다른 한편, 물 채널들은 또한 전지의 지속적인 냉각을 위해 사용될 수 있다.
- [0028] 다른 바람직한 일 실시예에 따르면, 레이저 가공에 의한 패터닝은, 워터마크에 추가적으로, 소결된 그린 페이퍼 또는 그린 페이퍼의 표면에 만들어진다. 이것의 장점은 예를 들어, 레이저 빔이 더 깊은 패턴들 또는 더 가파른 측면들을 갖는 패턴들이 만들어지도록 허용하거나, 또는 기존의 패턴들이 더 깊어지거나 또는 더 가파른 측면들로 제공되는 데 있다. 나아가, 레이저 가공은 또한 워터마크와 이전 플라이 사이의 중간층에 패터닝들 또는 채널들을 도입하여 기체 분배를 더욱 개선하기 위해, 하나 또는 그 이상의 이전 플라이들에 발생할 수 있다.
- [0029] 다른 바람직한 일 실시예에 따르면, 기체들은 (분리판들의 평면도에 기초하여) 분리판들의 중간에서 GDL로 결합되고 그후 다양한 워터마크 패턴들 및/또는 GDL의 외부 에지를 향하거나 또는 외부로 향하는 GDL 채널들을 통해 분배된다. 이 워터마크 패턴들 및/또는 채널들은 예를 들어 GDL의 중간에서 시작하여, 광선 형태 또는 나선 형태로, 외부로 이어질 수 있는데, 이것은 동심 환형 워터마크 패턴 및/또는 채널들에 의해 보완될 수 있다.
- [0030] GDL은 통상적으로  $300\text{ cm}^2$  내지  $350\text{ cm}^2$ 의 면적을 가지고 또한 시스템 및 기능에 따라  $100\text{ }\mu\text{m}$ 와  $300\text{ }\mu\text{m}$  사이의 두께이다. 유동장의 기능 또한 GDL에 통합되면, GDL의 두께 또한 더 커질 수 있다. 채널들의 깊이는  $350\text{ }\mu\text{m}$ 에 이른다. GDL은 또한 소정의 압축성(compressibility)을 가져야 하고 또한 동시에 개별적인 전지들 사이에서 전력을 전도해야 하므로, 이전의 플라이 및 원통형 와이어 플라이를 갖는 GDL은  $100\text{ }\mu\text{m}$  내지  $400\text{ }\mu\text{m}$ 의 두께를 가지고, 또한 BPP는  $75\text{ }\mu\text{m}$  또는 그보다 작은 두께를 갖는 매끄러운 판으로 구현될 것이다. 통상적으로 BPP는 또한 연료 전지를 위한 냉각 기능도 담당하기 때문에, 그 경우에서의 BPP는 또한 냉각제를 위한 다공성 또는 채널 유사 통로를 가지는 복합 샌드위치로 구현될 수 있다. 또는 냉각 채널들은 또한 GDL 또는 MEA에 통합될 수 있다.
- [0031] 다른 바람직한 일 실시예에 따르면, BPP는 단순화된 유동장 패턴을 가지고 또한 추가적으로 부분적인 유동장이 GDL에 생성된다. 이 경우에서 이전 플라이는 얇은 일 실시예를 가지고, 이로써 너무 많은 공간을 차지하지 않는다.
- [0032] 자동차 분야의  $120\text{ kW}$  연료 전지에 있어서, 대략 400 개의 전지들이 서로 스택킹되기 때문에, 전지 피치는 바람직하게  $0.8\text{ mm}$  내지  $1\text{ mm}$ 이다. 미세한 이전 플라이는 바람직하게  $5\text{ }\mu\text{m}$ 와  $50\text{ }\mu\text{m}$  사이의 두께를 가진다. 이전 플라이는 바람직하게 전체 GDL의 2% 내지 40%의 비율을 가진다.
- [0033] 다른 바람직한 일 실시예에 따르면, 고해상도 또는 다단계 워터마크들이 등록 표시들(registration marks), 위치지정 보조도구(positioning aids), 중심 보조도구(centering aids), 및 통로들의 시작 지점들을 생성하는 데 사용된다. 이것은 유리하게도, BPP 또는 CL과 같은, 다른 부품들에 대한 GDL의 정확한 포지셔닝이 예를 들어 투과광/반사광 영상 처리 시스템들을 이용해 가능하기 때문에, 연료 전지 스택을 형성하기 위한 GDL의 후처리를 단순화시킨다.
- [0034] 다른 바람직한 일 실시예에 따르면, 애노드 측 및 캐소드 측의 워터마크의 패턴들은 동일하지 않지만, 대신 영역에 있어서 그리고 물질-두께 방향으로 정확히 거울-대칭을 가진다. 달리 표현하면, 애노드 측의 GDL의 패턴들은 캐소드 측의 GDL의 패턴들에 대하여  $180^\circ$  만큼 위상 천이된다. 이것은 애노드 GDL이 캐소드 GDL의 유동장 측면 상에 유동장 측면에 의해 배치될 때, 하나의 GDL의 상승부들은 다른 GDL의 하강부들과 정확히 일치하는 것을 의미한다. 이로써 층층이 배치되면, 3D 거울 대칭을 갖는 2 개의 애노드/캐소드 GDL들의 결합은 정확하게 평면인 그린 페이퍼를 생성한다. 이 실시예는 그린 페이퍼는 그 채널 패턴을 잃지 않으면서 기계적인 압력으로 치밀해질 수 있다는 장점을 가진다. 그 이유는 워터마크에 의해 생성되어 유동장 채널들을 형성하는, 그린 페이퍼의 상승부들 및 하강부들은 후속하는 압박 및 기타 기계적 부하들에 의해 손상되거나 되밀리거나 평평해지지 않고, 그래서 채널들은 유효하게 남아 있을 수 있다. 이 실시예는 또한 애노드 GDL 및 캐소드 GDL이 다른 공극률을 가질 수 있는 추가적인 장점을 가진다. 애노드 GDL과 캐소드 GDL의 교대 구조에 대한 대안으로서, 스택에서 하나 걸러 하나의 애노드/캐소드 쌍 또는 하나 걸러 하나의 스택에 대하여, 3D 거울 대칭 GDL들을 제공하는 것도 가능하다.
- [0035] 특히 바람직하게 연료 전지는 양성자 교환 막 연료 전지(PEMFC)이다. 바람직한 일 실시예에 따르면, 이 경우에 있어서의 제1 페이퍼 웹은 그린 페이퍼로부터 생성되는 기체 확산층 내에 촉매 금속, 바람직하게 플래티늄으로 코팅된 막(CL)을 위한 확산층을 형성하고, 제2 페이퍼 웹은 그린 페이퍼로부터 생성되는 기체 확산층 내에 유동장을 갖는 분배 층(distribution layer)을 형성한다. 하지만, 본 발명의 그린 페이퍼로부터 생성되는 GDL은 또

한 예를 들어 양자교환 막 전해질 전지(PEMEC). 전해질 전지들, 또는 기타 P2X(power-to-X) 기술로서, 기체 분배를 위해 다공성의 전도층을 필요로 하는, 다른 종류들의 연료 전지들에도 사용될 수 있다.

[0036] 페이퍼 웹의 구성요소들은 바람직하게 예를 들어 은행권에 사용되는 것과 같은, 셀룰로스 섬유들로부터의 또는 면 섬유들로부터의, 또는 다른 천연 섬유들로부터의 또는 합성 섬유들로부터의, 또는 천연 및 합성 섬유들의 혼합물로부터의 종이를 포함한다. 더 바람직하게, 페이퍼 웹은 적어도 2 가지 다른 기질들의 조합으로 구성되는데, 이것들은 층층이 배치되고 서로 연결되는 - 하이브리드이다. 사용되는 페이퍼 웹의 중량에 관한 데이터는 예를 들어 DE 102 43 653 A9의 문서에 보고되어 있고, 여기의 관련 관찰들은 본 특허 출원에 완전히 포함된다. 금속-충전된 그린 페이퍼는 100 g/m<sup>2</sup> 내지 1200 g/m<sup>2</sup> 의 질량(grammage)을 가질 수 있다.

[0037] 소결 페이퍼에 사용되는 충전재 물질들은 모두 마이크로 스케일의 금속 분말들 및 금속 섬유들일 수 있는데, 예 들은 DE 10 2008 042 415 B3로부터 알려진 종류의, 티타늄, 구리, 아연 또는 녹슬지 않는 스테인레스 스틸이다. 페이퍼 플라이들에 있어서 서로 다른 공극률을 달성하기 위해, 여기서 다른 혼합물들이 이전의 플라이 및 원통형 와이어 플라이에 사용되는 것이 중요하다. 여기서 이전의 플라이는 원통형 와이어 플라이보다 더 미세하게 만들어진다. 이전의 플라이에 있어서 나노분말들이 채용되게 하는 것 또한 가능하다.

[0038] 부식으로부터 금속들을 가장 작은 기공들까지 보호하고 또한 바람직하게는 촉매-대향 면에 일반적으로 원하는 소수성 특성들을 생성하기 위해, 다른 바람직한 일 실시예에 따르면, (열) ALD 코팅 또는 다른 코팅 방법들이 후속하는 작동 단계들 중 하나에서 사용된다. 바람직하게 디바인더링 및 소결 후 및 GDL의 스탬핑 및 전환 전에, 여기서 절단부들은 부식의 위험이 있는 영역 바깥에 놓이거나, 또는 절단부들은 완성된 전지를 위한 추가의 작동 단계들에서 추가 밀봉이 제공된다. 그렇지 않다면, 펀칭 및 ALD로의 전환 후 GDL 코팅의 가능성 또한 존재한다.

[0039] 상기에서 언급된 특징들 및 이하에서 여전히 설명될 특징들은 청구항들의 보호 범위에 포함되는 한, 구체적인 조합들에서 뿐만 아니라 본 발명의 범위를 벗어나지 않으면서 다른 조합들에서 채용될 수 있음이 이해되어야 한다.

[0040] 본 발명의 장점들은 이하의 예시적인 실시예들 및 보충 도면들을 참조하여 설명된다. 예시적인 실시예들은 바람직한 실시예들을 구성하지만, 본 발명을 이에 한정하고자 하는 의도는 아니다. 나아가, 더 쉬운 이해를 위해, 도면들에서의 표현들은 매우 도식화되어 있고 실제 상황들을 반영하지 않는다. 특히, 도면들에 도시된 비율들은 실제로 존재하는 조건들과 일치하지 않고, 명확함을 향상시키기 위해서만 제공된다. 나아가, 이하의 예시적인 실시예들에서 설명되는 실시예들은 더 쉬운 이해를 위해, 필수 핵심 정보로만 축소된다. 실제 구현에 있어서, 실질적으로 더 복잡한 디자인들 또는 이미지들이 채용될 수 있다.

**도면의 간단한 설명**

[0041] 상세하고 개략적으로:

도 1은 본 발명의 그린 페이퍼를 생산하기 위한 이중-실린더 초지기를 보여준다.

도 2는 대략적인 표현으로 원통형 초지기 및 짧은 형성기를 보여준다.

도 3은 좌측에는 평면도로, 우측에는 단면 A-B를 따른 단면도로, 워터마크에 의해 형성되는 구불구불한 채널을 갖는 2-플라이 GDL을 보여준다.

도 4는 추가적으로 등록 표시들, 위치지정 보조도구 및 중심 보조도구를 갖는, 도 3의 2-플라이 GDL을 보여준다.

도 5는 각각의 경우들에 있어서 좌측에는 평면도로 우측에는 단면 A-B를 따른 단면도로, 3D 거울-대칭 애노드 및 캐소드 TGDL들의 조합을 보여준다.

도 6은 워터마크에 의해 형성되는 채널들을 갖는 GDL을 보여주는데, 이 채널들은 GDL의 중간에서 바깥으로 이어지고, 도 6a에는 광선-형태의 채널들이, 도 6b에는 광선-형태 및 동심원 채널들이, 도 6c에는 나선-형태의 채널들이 도시되어 있다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

[0042] 도 1은 예를 들어, WO 2006/099971 A2로부터의 보안 페이퍼의 생산을 위해 알려진 바와 같이, 이중-실린더 초지기(10)의 개략도를 보여준다. 초지기(10)은 2 개의 원통형 초지기들(12 및 14)을 포함하는데, 이것들은 전달 펠

트(transfer felt, 16)를 통해 서로에게 연결된다.

- [0043] 제1 초지기(12)에 있어서, 페이퍼 웹(20)은 원통형 와이어(18) 상에 형성된다. 제2 초지기(14)에 있어서, 이에 평행하게, 제2, 균일한 페이퍼 웹(30)이 생성되고, 전달 펠트(16)를 이용해 원통형 와이어(34)로부터 획득되어 제1 초지기(12)로 전달되는데, 여기서 이것은 펀치 롤러(36)의 영역에서 제1 페이퍼 웹(20)에 결합된다. 서로에게 결합된 페이퍼 웹들(38)은 함께 GDL을 형성하고 추가적인 처리 스테이션들로 전달된다.
- [0044] 도 2에 도시된 바와 같이, 제2 페이퍼 웹(30) 또한 짧은 형성기(40)로 생성될 수 있는데, 여기서 페이퍼 스톱은 원통형 와이어(44)의 표면 상에 헤드-박스 노즐(42)로 적용된다. 이러한 종류의 짧은 형성기로 특히, 예를 들어 15 내지 25 g/m<sup>2</sup>의 질량을 갖는, 얇은 페이퍼 플라이들을 생성하는 것이 가능하다.
- [0045] 도시된 초지기들(12, 14, 40)로, 유사하게 3 또는 그 이상의 페이퍼 웹들을 생성하고 결합하는 것도 가능하다는 것이 이해되어야 한다.
- [0046] 도 3은 워터마크에 의해 형성된 구불구불한 채널(2)을 갖는 2-플라이 GDL(1)를 대략적으로 보여준다. 좌측에는 평면도로 우측에는 단면 A-B를 따른 단면도로 보여준다.
- [0047] 단면 A-B에서, 흑색 영역(3)은 채널(2)로서 패터닝된 워터마크를 갖는 원통형 와이어 플라이를 보여주고, 음영 영역(4)은 미세한 기공 구조를 갖는 이전 플라이를 보여준다. 설정에 따라, 개별적인 플라이들(3 및 4)은 서로 다른 기본 두께를 가질 수 있다. 상기의 예에서 채널(2)의 구불구불한 패턴을 따라 명백한 것은 워터마크에 의해 형성되는 단면 프로파일이고, 원통형 와이어 플라이를 통한 두께 변조로서 명백하고, 도면에서 이것은 반원 형태를 가진다. 원칙적으로, 언더컷이 없고 벽 각도 < 80°를 형성하는, 모든 가능한 프로파일 형태가 여기서 가능하다. 큰 화살표들은 기체 입구/출구를 보여준다. GDL 주위의 개스킷은 이에 따라 설계되어야 한다.
- [0048] 도 4는 등록 표시들, 위치지정 보조도구 및 중심 보조도구에 의해 보충되는, 도 3의 2-플라이 GDL을 대략적으로 보여준다.
- [0049] 연료 전지 스택을 형성하는 GDL의 추가 처리를 단순화하기 위해, 하이라이트 워터마크들을 이용해 등록 표시들, 위치지정 보조도구, 중심 보조도구, 및 통로들의 시작 지점들을 통합하는 것이 가능하다. 이러한 통합은 투과광/반사광 영상 처리 시스템들을 이용해, 예를 들어, BPP 또는 CL과 같은, 다른 구성요소들에 대한 GDL의 정확한 포지셔닝이 가능하도록 보장한다.
- [0050] 라인들(5)은 예를 들어 하이라이트 워터마크들로서 실현되는, GDL을 위한 절단 표시들을 나타내고자 의도되고, 원들(6)은 중심/위치지정 보조도구들을 나타내고자 의도된다. 이것들은 물론 원하는 어떠한 형태로든 만들어질 수 있다. 또한 HD 워터마크 레이저 스크린들을 채용하는 것도 가능할 수 있다.
- [0051] 도 5는 애노드에 3D 거울 대칭으로 형성되는, 애노드 GDL(7.1)과 캐소드 GDL(7.2)의 조합을 대략적으로 보여준다. 이 도면은 애노드 GDL(7.1)의 표면의 평면도를 좌측 상단에, 캐소드 GDL(7.2)의 표면의 평면도를 좌측 하단에, 그리고 그 각각의 경우에 있어서 단면 A-B를 따른 단면도를 우측에 보여준다.
- [0052] 그린 페이퍼 및 완성된 GDL 내의 상승부들 및 하강부들, 워터마크에 의해 생성되고 유동장 채널들(8.1 및 8.2)을 형성하는 이 상승부들 및 하강부들은 압박 및 다른 기계적 부하들에 의해 다시 손상되거나 되밀리거나 평평해질 수 있고, 이것은 채널들(8.1 및 8.2)이 더 이상 완전히 유효하지 않음을 의미한다.
- [0053] 이 문제는 동일하지 않지만 대신 물질-두께 방향으로 또한 그 영역에 있어서 정확히 거울-대칭인, 애노드 측 및 캐소드 측의 GDL들 내에, 워터마크에 의해 생성되는, 패턴들에 의해 제거될 수 있다. 이것은, 애노드 GDL(7.1)이 캐소드 GDL(7.2)의 유동장 측면 상에 유동장 측면에 의해 배치될 때, 평행하게 배치되는 채널들(8.1 및 8.2)의 상승부들 및 하강부들이 서로 정확히 상쇄함을 의미한다. 3D 거울 대칭을 갖는 2 개의 애노드/캐소드 GDL들의 조합은 이로써 그 채널 패턴을 잃지 않고 어떠한 압력으로도 치밀해질 수 있는, 평면 소결 페이퍼를 생성한다.
- [0054] 나아가, 애노드 GDL(7.1) 및 캐소드 GDL(7.2)는 다른 공극률을 가질 수 있다. 예를 들어, 애노드 GDL(7.1)은 20% 내지 75%의 공극률을, 그리고 캐소드 GDL(7.2)는 30% 내지 90%의 공극률을 가질 수 있다. 따라서 캐소드 GDL(7.2)은 기체에 대한 저항으로 거의 작용하지 않고 대신 분리판에 대하여 스페이서로서만 작용한다.
- [0055] 도 6은 도 6a, 도 6b 및 도 6c의 평면도로, 기체들이 분리판들(미도시)의 중간에서 GDL에 결합되고 그후 GDL 내의 채널들 및/또는 다양한 워터마크 패턴들을 통해 GDL의 외부 에지를 향해 또는 외부로 향해 분배되는, 3 가지 실시예들을 보여준다.

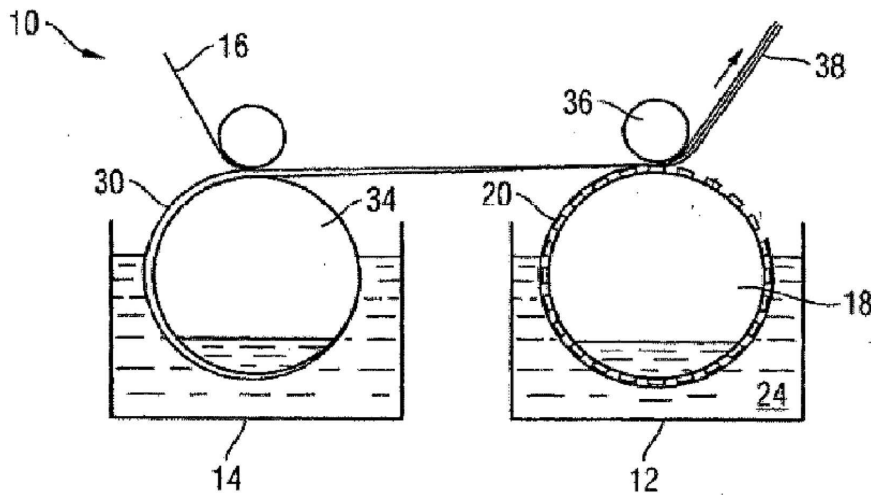
[0056] 도 6a에 따르면, 워터마크 패턴들의 채널들은, GDL의 중간에서 시작하는, 광선-형태의 디자인을 가진다. 기체들은 GDL의 중간에 있는 원형 개구부를 통해 공급되고; 흑색으로 도색된 영역들은 채널들을 형성하는, 감소된 GDL 두께를 가지는, 백색으로 도색된 영역들보다 더 큰 GDL 두께를 가지는 워터마크의 영역들을 구성한다.

[0057] 도 6b는 워터마크 패턴들의 방사상 채널들이 동심원의 환형 채널들에 의해 공급되어, 거미줄과 유사한 패턴을 생성하는, 예시적인 일 실시예를 보여준다. 기체들은 GDL의 중간에 있는 원형 개구부를 통해 공급되고; 흑색으로 도색된 영역들은 채널들을 형성하는, 감소된 GDL 두께를 가지는, 백색으로 도색된 영역들보다 더 큰 GDL 두께를 가지는 워터마크의 영역들을 구성한다.

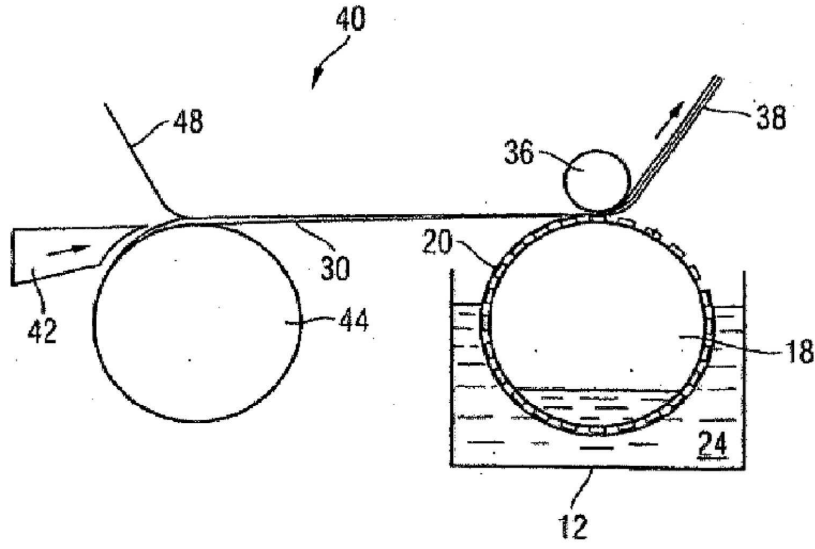
[0058] 도 6c는 워터마크 패턴들의 채널들은, GDL의 중간에서 시작하는, 나선-형태의 디자인을 가지는 일 실시예를 보여준다. 기체들은 GDL의 중간에 있는 원형 개구부를 통해 공급되고; 흑색으로 도색된 영역들은 채널들을 형성하는, 감소된 GDL 두께를 가지는, 백색으로 도색된 영역들보다 더 큰 GDL 두께를 가지는 워터마크의 영역들을 구성한다.

도면

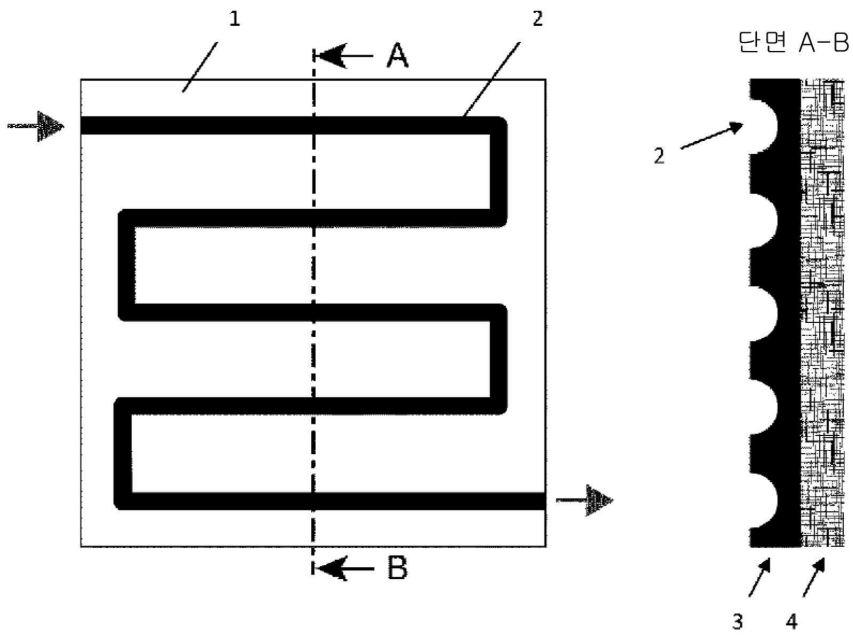
도면1



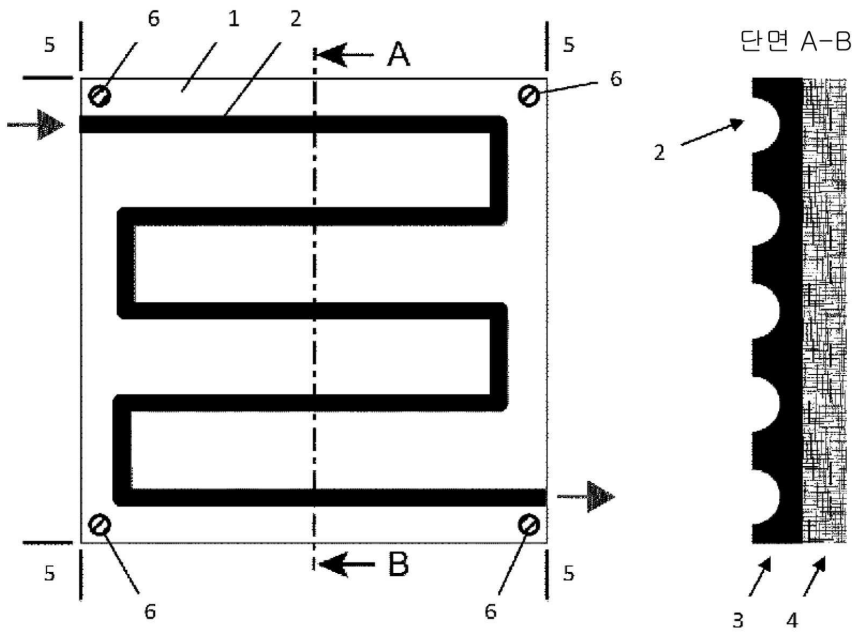
도면2



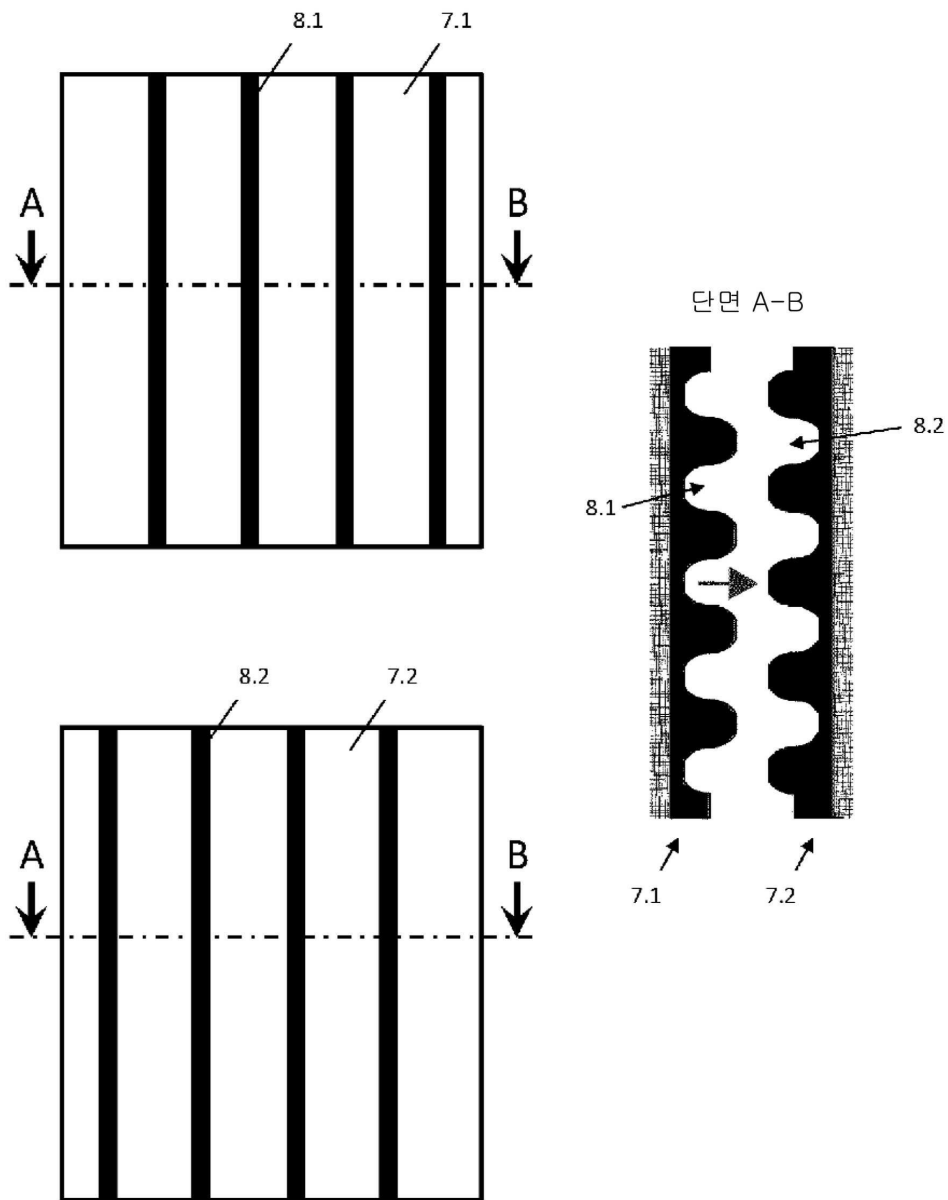
도면3



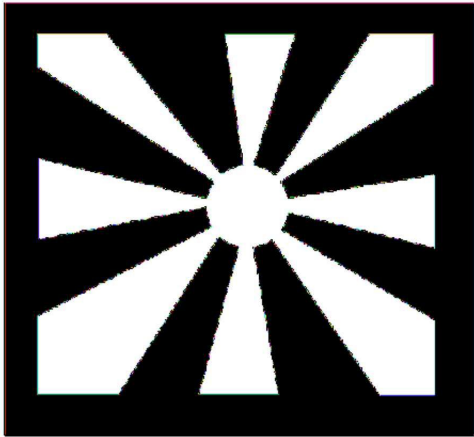
도면4



도면5



도면6a



도면6b



도면6c

