(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2010-0070823
(43) 공개일자 2010년06월28일

(51) Int. Cl.
C08K 3/04 (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)
H01M 8/02 (2006.01) *H01M 2/16* (2006.01)
(21) 출원번호 10-2008-0129546
(22) 출원일자 2008년12월18일
심사청구일자 2008년12월18일

(71) 출원인
고려대학교 산학협력단
서울 성북구 안암동5가1 고려대학교 내
(72) 발명자
김우년
서울 강남구 논현동 275 동부센트레빌 101동 202호
장선호
서울 영등포구 문래동3가 현대홈타운 101동 202호
김민수
서울특별시 광진구 중곡동 삼일연립 가동 1호
(74) 대리인
특허법인충현

전체 청구항 수 : 총 13 항

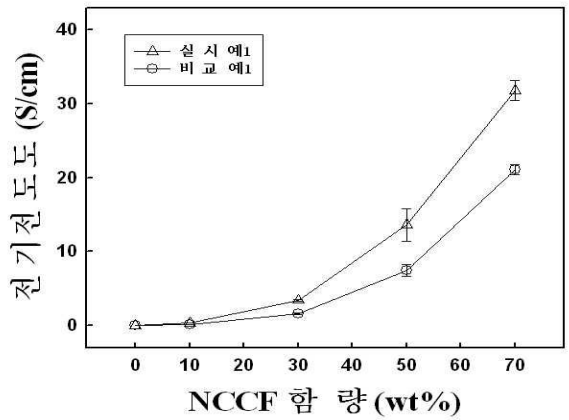
(54) 연료전지 분리판용 조성물, 그 제조방법, 이를 포함하는 연료전지 분리판 및 연료전지

(57) 요 약

연료전지 분리판용 조성물, 그 제조방법, 이를 포함하는 연료전지 분리판 및 연료전지가 제공된다.

본 발명에 따른 연료전지 분리판용 조성물은 제 1 전도성 첨가제; 및 상기 제 1 첨가제보다 작은 크기의 제 2 전도성 첨가제를 포함하며, 제 1 전도성 첨가제는 전체 조성물의 10 내지 70중량%이고, 제 2 전도성 첨가제는 0.1 내지 10중량%인 것을 특징으로 하며, 기존의 흑연 분리판보다 가격이 저렴하고, 제작이 용이할 뿐만 아니라, 가벼운 무게를 갖는 장점이 있으며, 다른 제조 방법에 의하여 제조된 분리판에 비하여 전기전도도를 향상시키는 효과를 갖는다.

대 표 도 - 도1



이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	00022326
부처명	중소기업청
연구사업명	산학연공동기술개발사업
연구과제명	Bipolar plate용 고분자 복합재료 전기전도도 향상에 관한 연구
주관기관	중소기업청
연구기간	2007년 07월 01일 ~ 2007년 12월 31일

특허청구의 범위

청구항 1

고분자를 포함하는 연료전지 분리판용 조성물에 있어서, 상기 조성물은 제 1 전도성 첨가제; 및 상기 제 1 첨가제보다 작은 크기의 제 2 전도성 첨가제를 포함하며, 제 1 전도성 첨가제는 전체 조성물의 10 내지 70중량%이고, 제 2 전도성 첨가제는 0.1 내지 10중량%인 것을 특징으로 하는 연료전지 분리판용 조성물.

청구항 2

제 1항에 있어서,

상기 제 2 전도성 첨가제와 제 1 전도성 첨가제의 직경비는 0.1 내지 0.0001인 것을 특징으로 하는 연료전지 분리판용 조성물.

청구항 3

제 1항에 있어서, 상기 첨가제는 탄소계 첨가제인 것을 특징으로 하는 연료전지 분리판용 조성물.

청구항 4

제 3항에 있어서, 상기 탄소계 첨가제는 탄소나노튜브, 흑연, 탄소섬유, 카본 블랙 및 이들의 혼합물로 이루어진 군으로부터 선택된 하나인 것을 특징으로 하는 연료전지 분리판용 조성물.

청구항 5

제 1항에 있어서,

상기 고분자는 폴리프로필렌(PP), 폴리에틸렌(PE), 폴리카보네이트(PC), 아크릴로니트릴-부타디엔-스티렌 공중합체(ABS) 및 이들의 혼합물로 이루어진 군으로부터 선택된 하나인 것을 특징으로 하는 연료전지 분리판용 조성물.

청구항 6

(a)고분자에 제 1 전도성 첨가제 및 상기 제 1 전도성보다 작은 크기의 제 2 전도성 첨가제를 혼입시키는 단계;

(b) 상기 (a) 단계의 혼입액을 교반하여 혼합시키는 단계; 및

(c) 상기 (b) 단계의 혼합액을 압축 성형하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 연료전지 분리판 제조방법.

청구항 7

제 6항에 있어서,

상기 (b) 단계의 교반 혼합은 상온의 기계적 교반에 의하여 수행되는 것을 특징으로 하는 연료전지 분리판 제조방법.

청구항 8

제 6항에 있어서,

상기 제 2 전도성 첨가제와 제 1 전도성 첨가제의 직경비는 0.1 내지 0.0001인 것을 특징으로 하는 연료전지 분리판 제조방법.

청구항 9

제 6항에 있어서,

상기 첨가제는 탄소계 첨가제인 것을 특징으로 하는 연료전지 분리판 제조방법.

청구항 10

제 6항에 있어서,

상기 탄소계 첨가제는 탄소나노튜브, 흑연, 탄소섬유, 카본 블랙 및 이들의 혼합물로 이루어진 군으로부터 선택된 하나인 것을 특징으로 하는 연료전지 분리판 제조방법.

청구항 11

제 6항에 있어서,

상기 고분자는 폴리프로필렌(PP), 폴리에틸렌(PE), 폴리카보네이트(PC), 아크릴로니트릴-부타디엔-스티렌 공중합체(ABS) 및 이들의 혼합물로 이루어진 군으로부터 선택된 하나인 것을 특징으로 하는 연료전지 분리판 제조방법.

청구항 12

제 1항 내지 제 6항 중 어느 한 항의 조성물로 이루어진 연료전지 분리판.

청구항 13

제 12항의 연료전지 분리판을 포함하는 연료전지.

명 세 서

발명의 상세한 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 연료전지 분리판용 조성물, 그 제조방법, 이를 포함하는 연료전지 분리판 및 연료전지에 관한 것으로, 보다 상세하게는 기존의 흑연 분리판보다 가격이 저렴하고, 제작이 용이할 뿐만 아니라, 가벼운 무게를 갖는 장점이 있으며 다른 제조 방법에 의하여 제조된 분리판에 비하여 전기전도도를 향상시키는 효과를 갖는 연료전지 분리판용 조성물, 그 제조방법, 이를 포함하는 연료전지 분리판 및 연료전지에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 연료전지는 미래를 대비하는 가장 유망한 청정 에너지원 중의 하나로 최근 크게 주목받고 있다. 다양한 방식의 연료전지 중, 고분자 전해질형 연료전지는 비교적 낮은 작동온도와 스택을 소형화 가능성으로 수소용 전력원으로 활발히 연구되고 있으며, 현재 실용화 가능성이 높다고 평가받고 있다. 이러한 고분자 전해질형 연료전지는 그 내부에 여러 셀들의 연결이 포함 되는데, 이러한 셀과 셀 간의 전기적인 연결은 바이폴라플레이트 또는 분리판에 의해 이루어지게 된다.

[0003] 바이폴라플레이트 또는 분리판은 연료전지 스택에서 각 전지를 분리하고 있는 전도성 판으로, 인접한 두 전지에서 한 전지에서는 연료극판으로 다른 한 전지에서는 공기극판으로 기능한다. 바이폴라플레이트(이하 분리판)는 연료가스와 공기를 차단하는 역할 외에 연료가스와 공기의 유로 확보 및 외부회로에 전류를 전달하는 역할을 하므로 높은 전기 전도성, 내식성, 열전도성과 함께 낮은 기체 투과성이 요구된다.

[0004] 분리판은 주로 수지가 함침된 흑연판, 탄소복합체 판, 금속 판 등으로 제작 되어지는데, 상기 분리판에는 유체의 흐름을 돕기 위해 유로가 형성되어 있다. 또한 분리판은 전지에서 발생된 열을 연료전지 스택 전체에 분배하는 역할도 수행사게 되는데, 과도하게 발생된 열은 공랭식 혹은 수냉식 열 교환을 통해 회수되어 버려지거나 사용할 수 있다.

[0005] 지금까지 개발된 분리판 종류는 수지 함침 흑연판, 탄소 복합체 분리판 및 금속 분리판으로 구분할 수 있다.

[0006] 이 중 수지 함침 흑연판은 흑연판에 수지(Resin)를 함침하여 기계 가공을 통해 기체 유로를 형성시킨 연료전지용 분리판이다. 전기 및 열전도성이 매우 높고, 부식에 매우 강하기 때문에 연료전지 연구개발 초기 단계부터 주로 사용되어 지고 있다.

[0007] 또한 탄소 복합체 분리판은 탄소와 수지를 섞은 상태에서 몰딩을 통해 분리판을 제작한 연료전지용 분리판으로, 수지함침 흑연판에 비해 다소 전기 전도성 및 열전도성이 낮아질 수 있는데, 수지의 선정 및 몰딩 방법의 최적화를 통해 수지 함침 흑연판과 유사한 수준의 연료전지 성능을 구현시키고자 한다.

[0008] 마지막으로, 금속 분리판은 금속(주로 스테인리스 스틸)을 가공/주물/몰딩 함으로써 제작 되어지며, 전기 및 열전도성은 매우 높으나, 내부식성이 약한 단점이 있다. 따라서, 표면 처리나 코팅, 합금 등을 통해 내부식성을 향상시켜 연료전지 스택에 사용되어지고 있다.

[0009] 연료전지 분리판은 상술한 바와 같이 연료전지 내부의 전자의 이동에 관여하기 때문에 플레이트를 관통하는 전기전도도가 가장 중요한 특성이다. 또한 가스 확산 층으로서 가스를 분배하는 유로가 있어야 하며, 반응 가스나 이온들에 대한 비 투과성이 요구되며, 화학적으로도 안정해야 한다. 또한, 고분자 전해질형 연료전지의 주 응용분야로 예상되는 자동차 및 휴대용 제품 시장의 특성을 고려할 때, 무게가 가벼워야 하며 대량 생산이 가능하여야 한다.

[0010] 상술한 재료 중 현재 가장 일반적으로 사용되고 있는 재료는 흑연이다. 하지만 흑연을 재료로 할 경우, 분리판에 존재해야 하는 반응가스의 유로를 기계적으로 가공하여야 하기 때문에 추가적인 공정을 필요로 한다. 이 공정의 추가로 인해 분리판의 대량 생산이 어렵고 높은 비용이 들게 된다. 또한 흑연계의 분리판은 전체 고분자 전해질형 연료전지 무게 중 약 80%를 차지할 정도로 그 무게가 무거우며, 딱딱한 물성으로 인하여 내부에서 깨져나갈 수 있다는 단점이 있다. 따라서, 이러한 문제점으로 인해 상업화가 속도가 매우 더디게 진행되고 있는 실정이다.

[0011] 이러한 점을 개선하기 위하여 상기 간략히 설명한 탄소 복합체 분리판이 개발되었다. 상기 탄소 복합체 분리판은 낮은 가격과 가벼운 무게로 흑연 바이폴라플레이트를 대체할 수 있는 것으로 평가 받는데, 상기 탄소 복합체 분리판 재료의 경우 원료가 되는 고분자의 특성상 가격이 저렴하고 무게가 가벼우며, 반응가스의 유로를 기계가공이 아닌 간단한 압축성형 혹은 사출성형으로 쉽게 제조할 수 있기 때문에 추가적인 공정으로 인한 가격적인 부담이 적고 생산 공정의 간단함으로 인하여 대량 생산이 가능하게 되며 다양한 고분자의 적용으로 기계적인 물성이나 화학적인 안정성 등에서 기존의 흑연 분리판을 효과적으로 대체할 수 있다. 하지만, 고분자 재료가 갖는 낮은 전기 전도도로 인하여, 분리판에 있어서 가장 중요한 특성이 전기 전도도를 충분히 달성하기 어렵고, 또한 기계가공보다는 간편하기는 하나 압축 또는 사출성형을 위하여 고분자를 고열로 용융시켜야 하며, 이 경우 반드시 열가소성 수지만이 응용될 수 있고, 이 과정에서 상당한 에너지가 소비되므로, 공정 경제적이지 않다라는 문제가 있다.

[0012]

발명의 내용

해결 하고자하는 과제

[0013] 따라서, 본 발명이 해결하고자 하는 첫 번째 과제는 높은 전기 전도도를 갖는 연료전지 분리판용 조성물을 제공하는 것이다.

[0014] 본 발명이 해결하고자 하는 두 번째 과제는 보다 경제적인 방식의 연료전지 분리판 제조방법을 제공하는 것이다.

[0015] 본 발명이 해결하고자 하는 세 번째 과제는 가벼운 무게, 대량 생산성 및 높은 전기 전도도를 갖는 연료전지 분리판을 제공하는 것이다.

[0016] 본 발명이 해결하고자 하는 네 번째 과제는 높은 효율 및 가벼운 무게의 연료전지를 제공하는 것이다.

과제 해결수단

[0017] 상기 첫 번째 과제를 해결하기 위하여, 본 발명은 고분자를 포함하는 연료전지 분리판용 조성물에 있어서, 상기 조성물은 제 1 전도성 첨가제; 및 상기 제 1 첨가제보다 작은 크기의 제 2 전도성 첨가제를 포함하며, 제 1 전도성 첨가제는 전체 조성물의 10 내지 70중량%이고, 제 2 전도성 첨가제는 0.1 내지 10중량%인 것을 특

징으로 하는 연료전지 분리판용 조성물을 제공한다.

[0018] 상기 제 2 전도성 첨가제와 제 1 전도성 첨가제의 직경비는 0.1 내지 0.0001이며, 본 발명의 일 실시예에서 상기 전도성 첨가제는 탄소계 첨가제일 수 있으며, 상기 탄소계 첨가제는 탄소나노튜브, 흑연, 탄소섬유, 카본 블랙 및 이들의 혼합물로 이루어진 군으로부터 선택된 하나일 수 있다.

[0019] 또한 상기 고분자는 폴리프로필렌(PP), 폴리에틸렌(PE), 폴리카보네이트(PC), 아크릴로니트릴-부타디엔-스티렌 공중합체(ABS) 및 이들의 혼합물로 이루어진 군으로부터 선택된 하나일 수 있다.

[0020] 상기 두 번째 과제를 해결하기 위하여, 본 발명은 (a)고분자에 제 1 전도성 첨가제 및 상기 제 1 전도성보다 작은 크기의 제 2 전도성 첨가제를 혼입시키는 단계; (b) 상기 (a) 단계의 혼입액을 교반하여 혼합시키는 단계; 및 (c) 상기 (b) 단계의 혼합액을 압축 성형하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 연료전지 분리판 제조방법을 제공한다. 상기 (b) 단계의 교반 혼합은 상온의 기계적 교반에 의하여 수행될 수 있으며, 상기 제 2 전도성 첨가제와 제 1 전도성 첨가제의 직경비는 0.1 내지 0.0001일 수 있다.

[0021] 또한, 상기 첨가제는 탄소계 첨가제일 수 있는데, 특히 상기 탄소계 첨가제는 탄소나노튜브, 흑연, 탄소섬유, 카본 블랙 및 이들의 혼합물로 이루어진 군으로부터 선택된 하나일 수 있다. 또한, 상기 고분자는 폴리프로필렌(PP), 폴리에틸렌(PE), 폴리카보네이트(PC), 아크릴로니트릴-부타디엔-스티렌 공중합체(ABS) 및 이들의 혼합물로 이루어진 군으로부터 선택된 하나일 수 있다.

[0022] 상기 세 번째 과제를 해결하기 위하여, 본 발명은 상기 연료전지 분리판용 조성물로 이루어진 연료전지 분리판을 제공한다.

[0023] 상기 네 번째 과제를 해결하기 위하여, 본 발명은 상기 제조된 연료전지 분리판을 포함하는 연료전지를 제공한다.

효 과

[0024] 본 발명에 따른 고분자 복합재료 분리판은 기존의 흑연 분리판보다 가격이 저렴하고, 제작이 용이할 뿐만 아니라, 가벼운 무게를 갖는 장점이 있으며, 연료전지의 상용화를 앞당길 수 있다. 또한, 본 발명에서 제시하는 교반혼합을 통해 2종의 전도성 첨가제를 첨가하는 분리판 제조방법은 제작이 용이하면서도, 다른 제조 방법에 비해 전기전도도를 향상시키는 효과를 가진다.

발명의 실시를 위한 구체적인 내용

[0025] 이하 도면 및 실시예 등을 통하여 본 발명을 보다 상세히 설명한다. 하지만, 본 발명의 범위는 아래의 도면, 실시예 등에 의하여 제한되지 않는다.

[0026] 본 발명은 연료전지 분리판의 전도도, 특히 고분자 복합재료 분리판의 전도도 향상을 위하여, 고분자에 서로 상이한 크기(여기에서, 크기는 특히 길이를 의미한다)를 갖는 전도성 첨가제를 고분자에 혼입하여, 교반 혼합시키는 경우 연료전지 분리판의 전기 전도도가 향상되는 점에 착안한 것이다. 즉, 본 발명은 고분자 재료에 혼입된 작은 크기의 첨가제가 큰 크기 첨가제의 전기적 연결을 보조함으로써, 고분자 재료 전체의 전기 전도도가 향상되는 점을 기초한 것으로, 아래 실험예를 통하여 상이한 크기의 첨가제에 의한 전도도 향상 효과가 설명된다.

[0027] 연료전지 분리판의 전기전도도 향상을 위해서, 큰 크기의 제 1 전도성 첨가제는 전체 조섬물의 10 내지 70 중량%를 차지하는 것이 바람직하고, 제 2 전도성 첨가제는 0.1 내지 10중량%인 것이 바람직하다. 만약 제 1 전도성 첨가제가 상기 범위를 초과하는 경우 고분자 재료에 의한 가공성 향상 효과가 미비해지며, 반대로 상기 범위 미만인 경우 전도도 향상효과가 충분하지 않게 된다. 또한 제 2 전도성 첨가제가 상기 범위 미만인 경우 제 1 전도성 첨가제의 전도도 향상이 충분하지 않고, 반대로 상기 범위를 초과하는 경우 작은 크기의 전도성 첨가제가 과도하게 증가하여, 첨가제 연결을 통한 전도성 향상을 기대하기 어렵다.

[0028] 상기 전도성 첨가제로는 탄소나노튜브, 흑연, 탄소섬유, 카본블랙 등의 모든 탄소계 화합물 또는 금속 화합물을 사용할 수 있는데, 탄소계 화합물이 내부식성등을 고려하여 볼 때 보다 바람직하다. 아래에서 설명되는 본 발명의 일 실시예에서니켈이 코팅된 탄소섬유(NCCF)를 큰 크기의 제 1 전도성 첨가제로, 탄소나노튜브를 제 2 전도성 첨가제로 사용하였으나, 아래의 크기비가 만족되는 경우라면, 자유로이 전도성 첨가제를 선택, 사용할 수 있으며, 본 발명은 실시예에 의하여 제한되지 않는다.

[0029] 본 발명에 따른 전도도 향상은, 상술한 바와 같이 상이한 크기를 갖는 두 종류의 첨가제를 고분자에 분산, 혼입

시킴으로써 달성된다. 특히 본 발명은 상기 두 종류 첨가제가 갖는 크기비(제 2 전도성 첨가제 / 제 1 전도성 첨가제)를 0.1 내지 0.0001의 범위로 제공하는데, 만약 0.1을 초과하는 경우 제 2 전도성 첨가제에 의한 제 1 전도성 첨가제의 전기적 연결이 충분하지 않으며, 반대로 0.0001 미만인 경우, 너무나 미세한 제 2 첨가제를 사용하므로 과대한 제 2 첨가제 사용이 요구된다. 즉, 본 발명은 두 가지 크기의 전도성 첨가제를 사용하는 경우 단일 종류의 전도성 첨가제를 사용하는 경우보다, 보다 향상된 전도도를 얻을 수 있다는 점에 착안한 것으로, 특히 작은 크기의 전도성 첨가제가 큰 크기의 전도성 첨가제의 전기적 연결을 보조함으로써 이러한 효과를 달성한다.

[0030] 또한, 본 발명의 연료전지 분리판은 폴리프로필렌(PP), 폴리에틸렌(PE), 폴리카보네이트(PC), 아크릴로니트릴-부타디엔-스티렌 공중합체(ABS) 및 이들의 혼합물로 이루어진 군으로부터 선택된 고분자, 특히 열 가소성 고분자를 사용하는 것이 바람직한데, 그 이유는 분리판의 성형 공정을 용이하게 하기 위함이다. 하지만, 본 발명은 이에 제한되지 않으며, 충분한 성형성을 보장할 수 있는 한 어떠한 고분자 수지도 사용가능하며, 종래 기술과 같이 용융/혼합 공정을 위하여 열가소성 수지를 반드시 사용하여야 하는 제약이 없다.

[0031] 상기 두 번째 과제를 해결하기 위하여, 본 발명은 a)고분자에 제 1 전도성 첨가제 및 상기 제 1 전도성보다 작은 크기의 제 2 전도성 첨가제를 혼입시키는 단계; (b) 상기 (a) 단계의 혼입액을 교반하여 혼합시키는 단계; 및 (c) 상기 (b) 단계의 혼합액을 압축 성형하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 연료전지 분리판 제조방법을 제공한다. 특히, 본 발명은 고분자 및 첨가제 혼합 방식을 교반 방식을 채택함으로써, 용융 방식에 의하던 종래 방식에 비하여 고분자 수지 범위를 확대하였고, 보다 경제적인 방식(에너지 절감)의 고분자 수지 제조를 가능하게 하였다. 본 발명의 일 실시예에서 상기 교반방식은 상온에서 진행된 기계적 교반방식이었으나, 본 발명은 이에 제한되지 않는다.

[0032] 또한, 본 발명은 압축 성형을 통하여 분리판을 제조하였는데, 이 경우 기계적 가공에 의하던 종래 기술의 분리판 제조방법에 비하여 공정이 간소화되고, 생산 속도가 빨라지는 효과가 있다.

[0033] 이하, 본 발명의 실시예를 통해 본 발명을 보다 상세히 설명하나, 본 발명이 이에 국한되는 것은 아니다.

[0034] 실시예 1

[0035] 열가소성 고분자인 폴리프로필렌(PP)과 전도성 첨가제인 니켈이 코팅된 탄소섬유(NCCF)를 제 1 첨가제로 사사용하여 고분자 복합재료 바이폴라플레이트을 제조하였다. 이에 사용된 PP는 삼성토탈 제조사의 HJ500 이며, 녹는 점은 170℃이다. NCCF는 Sulzer Metco Inc.사의 E-FILL 2901을 사용하였으며, 지름이 10㎛, 길이가 120-130㎚이다.

[0036] 두 재료의 혼합은 기계적 교반기를 이용한 교반혼합으로 진행하였다. 교반조건은 상온에서 분당 2000회전을 실시하였으며, 5분간 진행하였다. 또한, NCCF의 함량은 각각 10, 30, 50, 70wt%으로 제조하였으며, 압축성형으로 260℃의 온도에서 분리판을 제작하였다.

[0037] 실시예 2

[0038] 열가소성 고분자인 PP와 전도성 첨가제인 NCCF와 탄소나노튜브(CNT)를 사용하여 고분자 복합재료 분리판을 제조하였다. 이에 사용된 PP와 NCCF는 실시예 1과 동일하며, CNT는 (주)제이오 사의 다중벽 탄소나노튜브를 사용하였다. CNT의 지름은 9-12㎚이며, 길이는 10-15㎛이다. 두 재료의 혼합과 성형과정은 실시예 1과 동일하게 실시하였다. 또한, NCCF의 함량은 실시예 1과 동일하며, CNT의 함량은 1wt% 첨가하였다.

[0039] 실시예 3

[0040] 열가소성 고분자인 PP와 전도성 첨가제인 NCCF와 CNT를 사용하여 고분자 복합재료 분리판을 제조하였다. 이에 사용된 PP, NCCF 및 CNT는 실시예 2와 동일하다. 두 재료의 혼합과 성형과정은 실시예 1과 동일하게 실시하였다. 또한, NCCF의 함량은 실시예 1과 동일하며, CNT의 함량은 3wt% 첨가하였다.

[0041] 실시예 4

[0042] 열가소성 고분자인 PP와 전도성 첨가제로서 제 1 첨가제인 NCCF 및 제 2 첨가제인 CNT를 사용하여 고분자 복합재료 분리판을 제조하였다. 이에 사용된 PP, NCCF 및 CNT는 실시예 2와 동일하다. 두 재료의 혼합과 성형과정은 실시예 1과 동일하게 실시하였다. 또한, NCCF의 함량은 실시예 1과 동일하며, CNT의 함량은 5wt% 첨가하였다.

[0043] 비교예 1

[0044] 열가소성 고분자인 PP와 전도성 첨가제인 NCCF를 사용하여 고분자 복합재료 분리판을 제조하였다. 이에 사용된 PP와 NCCF는 실시예 1과 동일하다. 두 재료의 혼합은 이축압출기를 이용한 용융혼합으로 진행하였다. 용융혼합시의 이축압출기 온도는 호퍼부분은 190℃, 다이부분은 260℃으로 설정하였으며, 스크류의 회전속도는 50rpm으로 진행하였다. 또한, NCCF의 함량은 각각 10, 30, 50, 70wt%으로 제조하였으며, 압축성형으로 260℃의 온도에서 분리판을 제작하였다.

[0045] 비교예 2

[0046] 열가소성 고분자인 PP와 전도성 첨가제인 NCCF와 CNT를 사용하여 고분자 복합재료 분리판을 제조하였다. 이에 사용된 PP, NCCF 및 CNT는 실시예 2와 동일하다. 두 재료의 혼합과 성형과정은 비교예 1과 동일하게 실시하였다. 또한, NCCF의 함량은 비교예 1과 동일하며, CNT의 함량은 1wt% 첨가하였다.

[0047] 비교예 3

[0048] 열가소성 고분자인 PP와 전도성 첨가제인 NCCF와 CNT를 사용하여 고분자 복합재료 분리판을 제조하였다. 이에 사용된 PP, NCCF 및 CNT는 실시예 2와 동일하다. 두 재료의 혼합과 성형과정은 비교예 1과 동일하게 실시하였다. 또한, NCCF의 함량은 비교예 1과 동일하며, CNT의 함량은 3wt% 첨가하였다.

[0049] 비교예 4

[0050] 열가소성 고분자인 PP와 전도성 첨가제인 NCCF와 CNT를 사용하여 고분자 복합재료 분리판을 제조하였다. 이에 사용된 PP, NCCF 및 CNT는 실시예 2와 동일하다. 두 재료의 혼합과 성형과정은 비교예 1과 동일하게 실시하였다. 또한, NCCF의 함량은 비교예 1과 동일하며, CNT의 함량은 5wt% 첨가하였다.

[0051] 실험예 1

[0052] 전기전도도 측정

[0053] 고분자 복합재료 분리판의 요구물성 중 최우선시 되는 물성이 전기전도도이므로 본 실험예에서 전기전도도를 측정하는데, 측정 방법은 아래와 같다.

[0054] 먼저 전기전도도 측정 시편은 지름 30㎜, 두께 1㎜의 원형 판을 압축성형법으로 제조하였다. 시편의 밑면과 윗면에 전기적 저항이 작은 금판을 접촉시키고, 금판에 전선을 연결하여 전류를 흘려주고, 그에 따른 전압을 측정하여 전기전도도를 계산하였다. 시편과 금판 사이의 접촉 저항을 줄여주기 위하여 시편의 밑면과 윗면에 은 페이스트를 바르고 측정하였으며, 고분자 전해질 연료전지 내에서 바이폴라가 받게되는 압력과 동일한 45.4kgf의 압력을 주어 측정하였으며, 측정한 결과는 아래 표 1과 같다.

표 1

[0055]

	전기전도도(S/cm)				비 고
	NCCF 10wt%	NCCF 30wt%	NCCF 50wt%	NCCF 70wt%	
실시예 1	0.3356	3.4492	13.6094	31.7700	CNT 0wt%
실시예 2	1.9448	5.6558	15.7821	32.8764	CNT 1wt%
실시예 3	2.0539	6.1618	18.5663	34.2339	CNT 3wt%

실시예 4	2.6299	8.2741	20.4546	35.8916	CNT 5wt%
비교예 1	0.1074	1.5755	7.4255	21.0593	CNT 0wt%
비교예 2	0.1358	5.3709	11.4779	24.0846	CNT 1wt%
비교예 3	0.1417	6.0499	14.0992	27.0814	CNT 3wt%
비교예 4	0.1401	6.4328	15.1123	28.0393	CNT 5wt%

[0056] 도 1은 용융혼합과 교반혼합법으로 제조된 각 분리판의 전기전도도를 나타낸 표이다. 도 1에서에와 같이, 교반혼합으로 제조된 경우 전도성 첨가제의 함량이 같은 용융혼합으로 제조된 경우보다 전기전도도가 높게 관찰되었다.

[0057] 도 1은 교반혼합으로 제조된 실시예 1과 용융혼합으로 제조된 비교예 1의 전기전도도를 나타낸 그래프이며, 도 2는 실시예 2와 비교예 2, 도 3은 실시예 3과 비교예 3, 도 4는 실시예 4와 비교예 4의 전기전도도를 비교한 그래프이다.

[0058] 도 1 및 도 2에서 관찰 가능하듯이, 교반혼합으로 제조한 시편의 전기전도도가 더 우수하게 측정되었으며, 같은 NCCF의 함량에서 CNT가 첨가되는 함량이 증가할수록 전기전도도는 향상되었음을 확인 할 수 있다. 이는 CNT의 첨가가 NCCF 사이사이의 추가적인 전기적 연결을 형성하였기 때문이며, 보조첨가제로서의 효과를 반증하는 것이다.

[0059] 도 5는 각 실시예의 전기전도도를 나타낸 그래프이다. 보조첨가제인 CNT의 함량이 증가할수록 전기전도도가 향상되는 결과를 보인다. 특히 NCCF의 함량이 50wt%인 경우, CNT를 첨가하지 않은 실시예 1은 13.6S/cm, CNT가 5wt% 첨가된 실시예 4는 20.5S/cm의 전기전도도가 측정되었다. 이는 5wt%의 CNT 첨가로 전기전도도가 50.7% 향상되는 결과를 얻은 것이다. 앞에서도 설명했듯이, 이는 소량의 CNT첨가가 보조첨가제로의 역할을 적절히 수행하여 전기전도도 향상에 큰 기여를 하였다고 판단되는 부분이다.

[0060] 도 6은 NCCF의 함량이 50wt% 일 때, 도 7은 NCCF의 함량이 70wt% 일때의 CNT 첨가에 따른 비교 그래프이다. CNT 첨가로 인해 전기전도도가 증가되는 경향을 잘 보여주고 있다.

[0061] 실험예 2

[0062] 전자주사현미경 관찰

[0063] 복합재료의 시편을 액체질소를 이용하여 냉각 후 절단하였다. 파단면에 백금을 코팅하여 15kv의 가속전압으로 이미지를 관찰하였다.

[0064] 도 8 내지 10은 NCCF가 50wt% 첨가되고 보조첨가제인 CNT 첨가된 시편의 전자주사현미경 사진이다.

[0065] 도 8은 CNT가 1wt%, 도 9는 3wt%, 도 10은 5wt% 첨가된 시편의 사진이다. 사진에서 보이는 섬유가 NCCF이며, 고분자에 고르게 분산되어 있는 것이 CNT이다. 사진에서 확인 가능하듯이 CNT의 첨가량이 증가할수록 고분자에 다량의 CNT가 분산되게 되어, 상대적으로 크기가 큰 NCCF 사이에서 추가적인 전기적인 연결을 형성함을 관찰할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0066] 도 1은 실시예 1과 비교예 1의 NCCF 함량에 따른 전기전도도를 나타낸 그래프이다.

[0067] 도 2는 실시예 2과 비교예 2의 NCCF 함량에 따른 전기전도도를 나타낸 그래프이다.

[0068] 도 3은 실시예 3과 비교예 3의 NCCF 함량에 따른 전기전도도를 나타낸 그래프이다.

[0069] 도 4는 실시예 4과 비교예 4의 NCCF 함량에 따른 전기전도도를 나타낸 그래프이다.

[0070] 도 5는 각 실시예의 NCCF 함량에 따른 전기전도도를 나타낸 그래프이다.

[0071] 도 6은 각 실시예의 NCCF 함량이 50wt% 일 때의 전기전도도를 나타낸 그래프이다.

[0072] 도 7은 각 실시예의 NCCF 함량이 70wt% 일 때의 전기전도도를 나타낸 그래프이다.

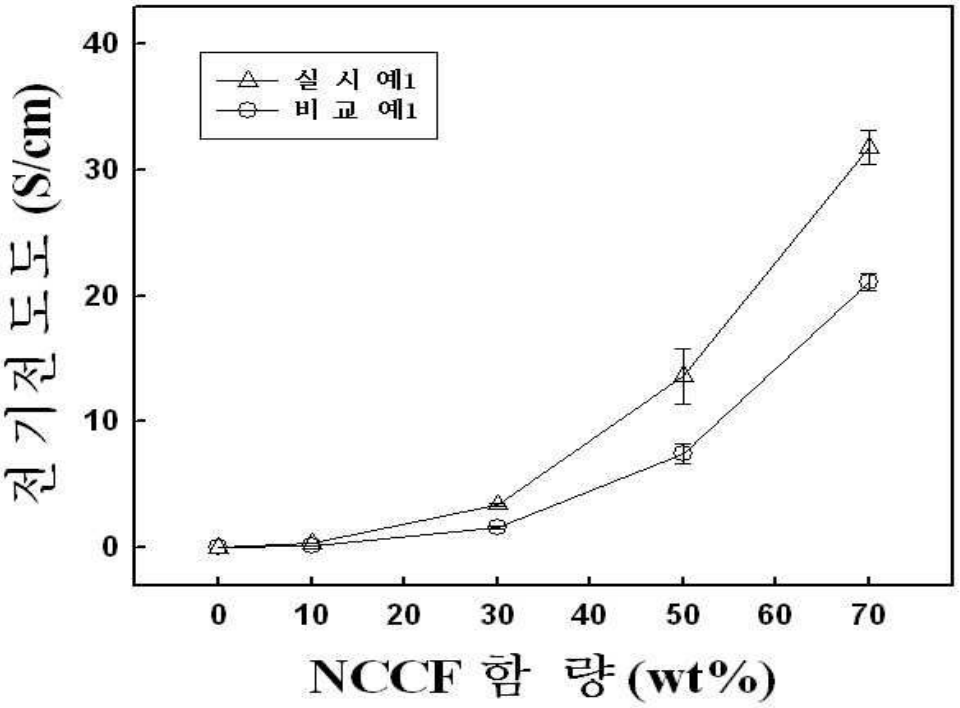
[0073] 도 8은 각 NCCF 함량이 50wt% 일 때의 비교예 2의 주사전자현미경 사진이다.

[0074] 도 9는 각 NCCF 함량이 50wt% 일 때의 비교예 3의 주사전자현미경 사진이다.

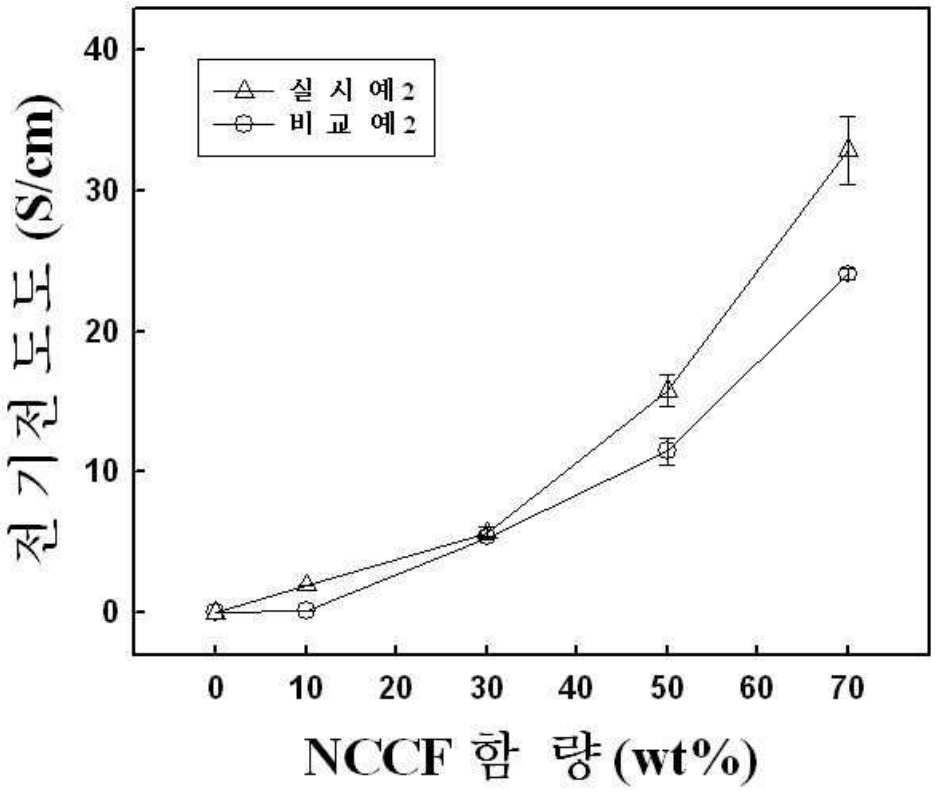
[0075] 도 10은 각 NCCF 함량이 50wt% 일 때의 비교예 4의 주사전자현미경 사진이다.

도면

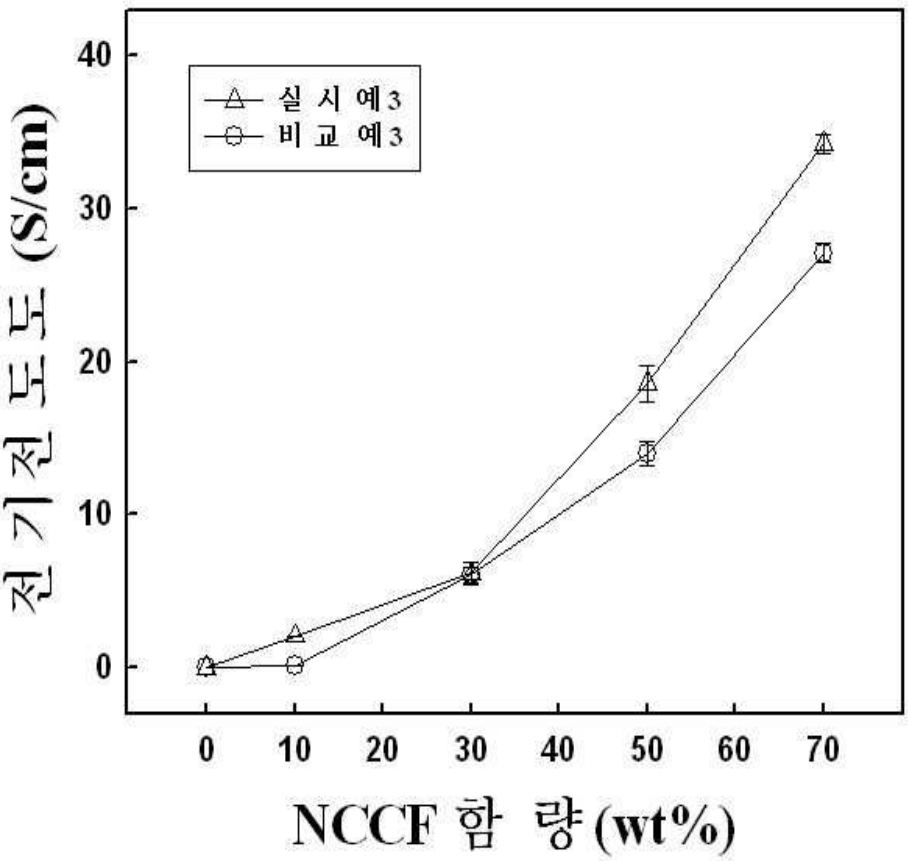
도면1



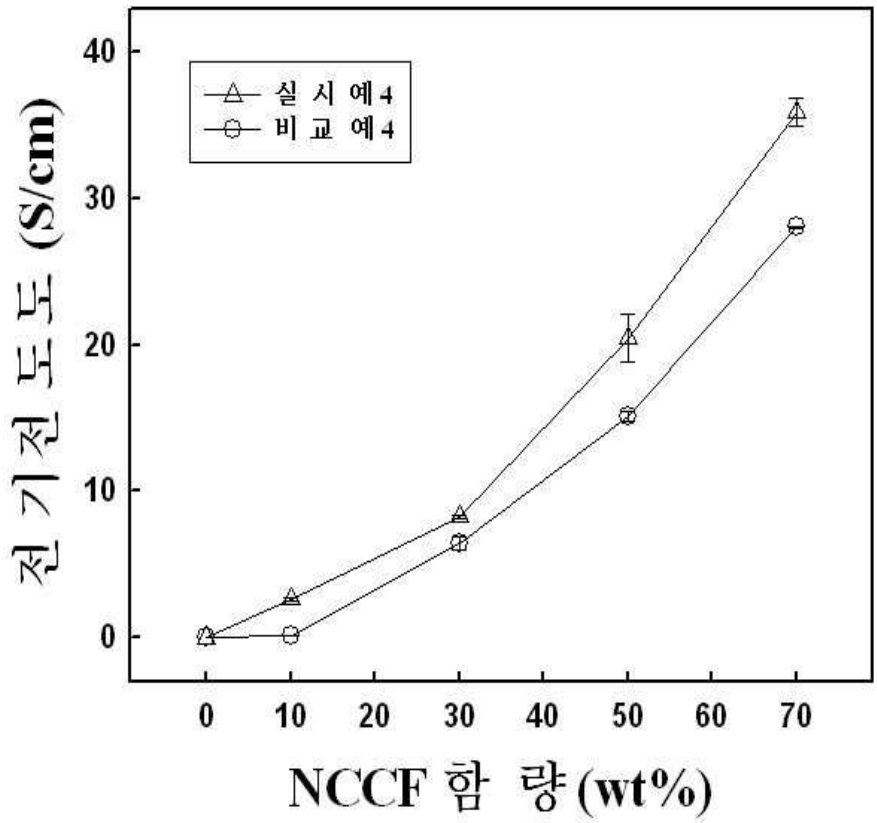
도면2



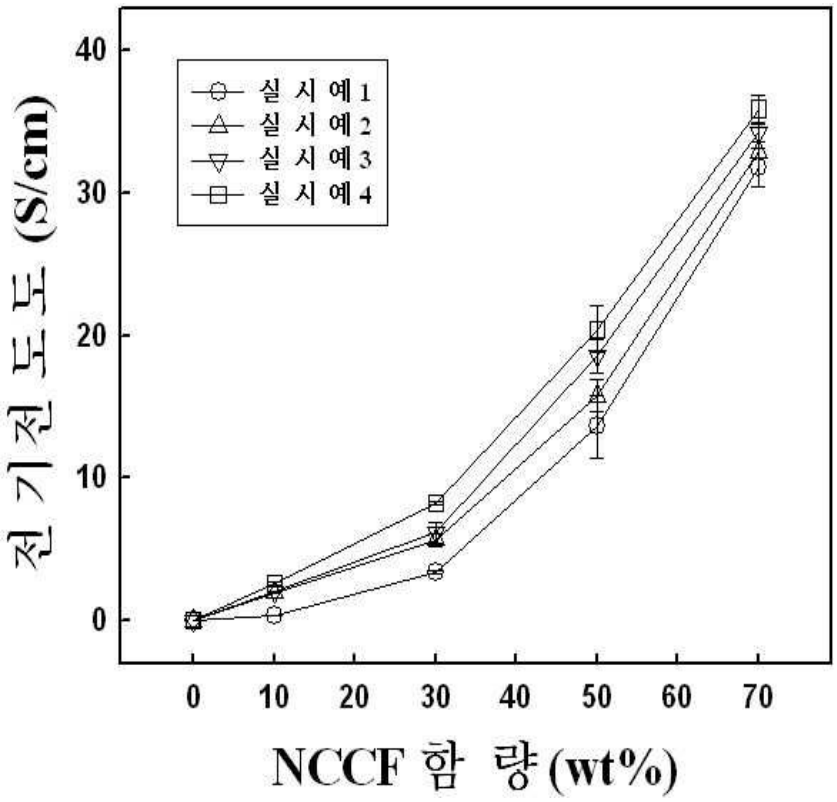
도면3



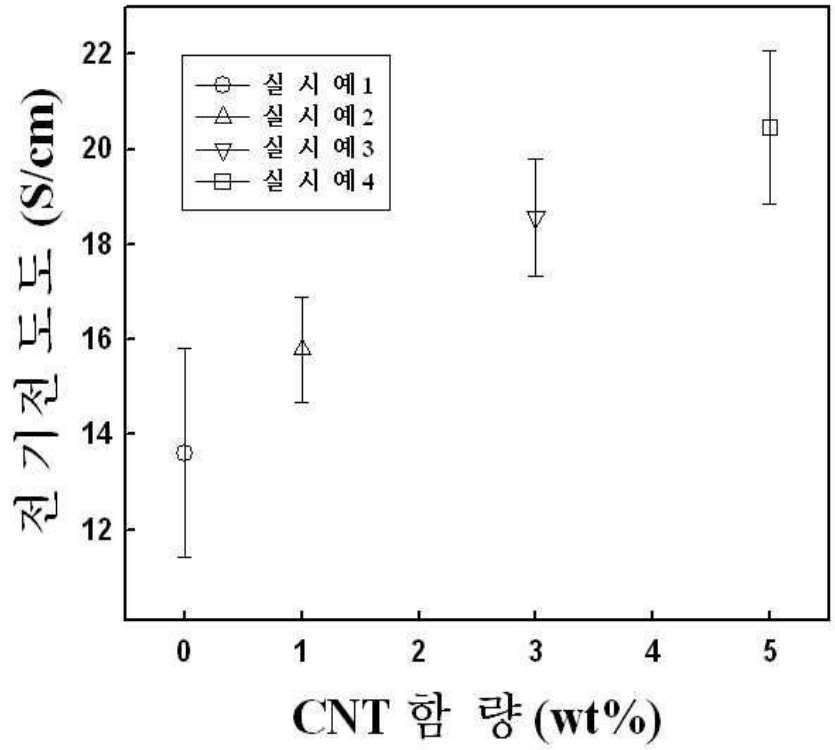
도면4


실 시 예 4
비 교 예 4
전 기 전 도 도 (S/cm)
NCCF 함 량 (wt%)
0
10
20
30
40
50
60
70

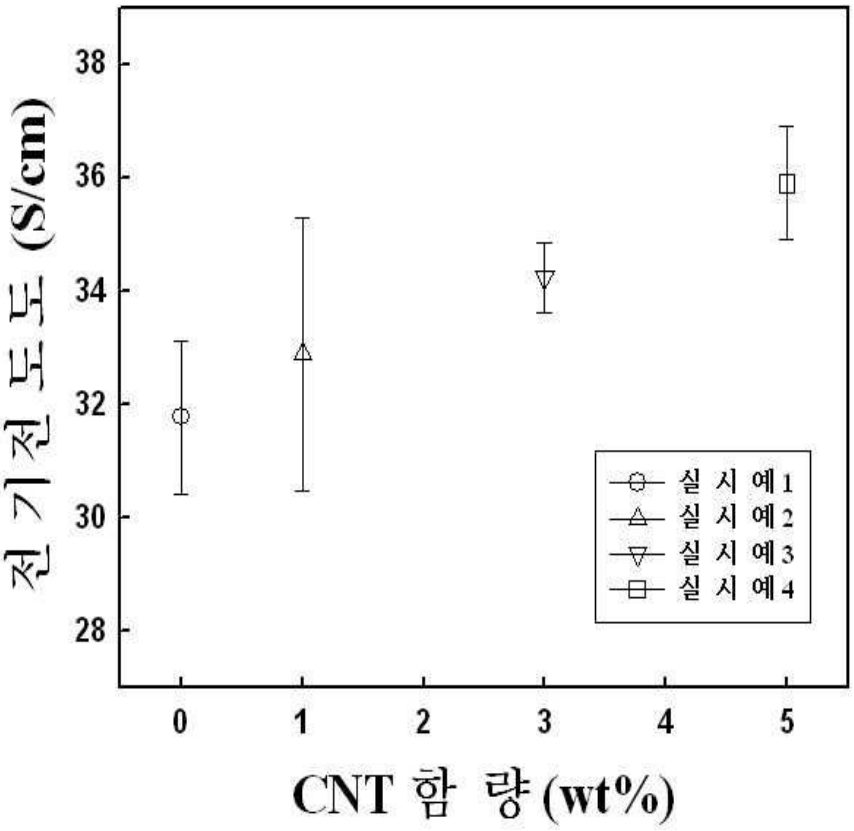
도면5


실 시 예 1
실 시 예 2
실 시 예 3
실 시 예 4
전 기 전 도 도 (S/cm)
NCCF 함 량 (wt%)
0
10
20
30
40
50
60
70

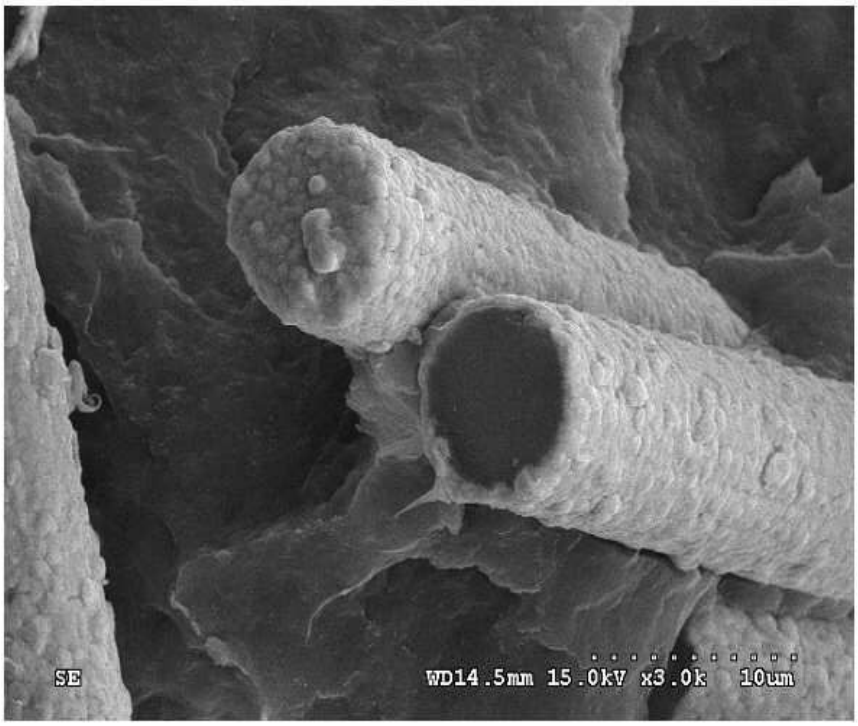
도면6


전기전도도 (S/cm)
22
20
18
16
14
12
실시예1
실시예2
실시예3
실시예4
0
1
2
3
4
5
CNT 함량 (wt%)

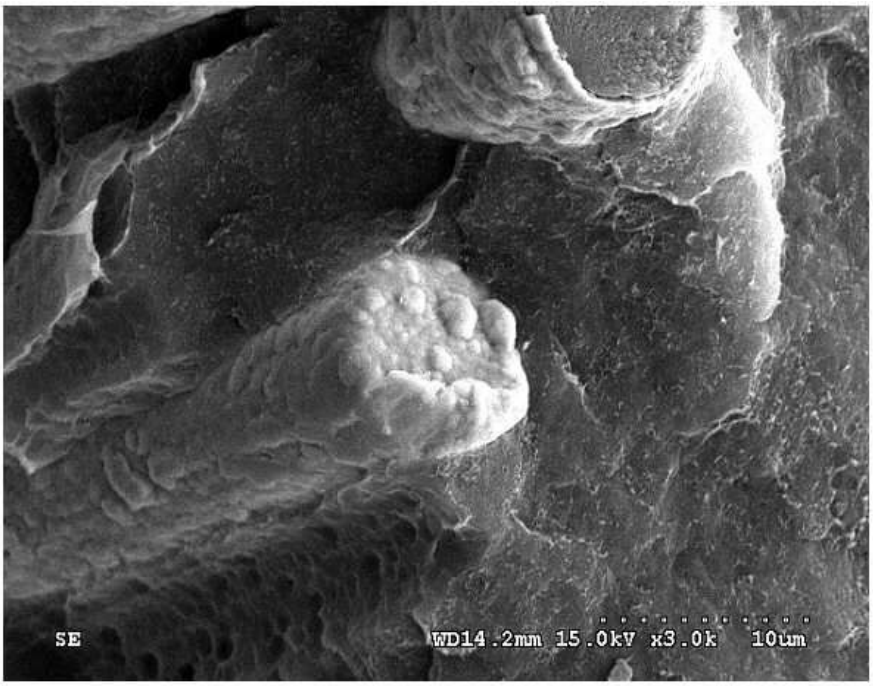
도면7


전기전도도 (S/cm)
38
36
34
32
30
28
실시예1
실시예2
실시예3
실시예4
0
1
2
3
4
5
CNT 함량 (wt%)

도면8



도면9



도면10

