



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2012년03월21일  
(11) 등록번호 10-1125076  
(24) 등록일자 2012년03월02일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
H01M 8/02 (2006.01)  
(21) 출원번호 10-2009-7003596  
(22) 출원일자(국제) 2007년09월27일  
심사청구일자 2009년02월20일  
(85) 번역문제출일자 2009년02월20일  
(65) 공개번호 10-2009-0040445  
(43) 공개일자 2009년04월24일  
(86) 국제출원번호 PCT/JP2007/069419  
(87) 국제공개번호 WO 2008/038835  
국제공개일자 2008년04월03일  
(30) 우선권주장  
JP-P-2006-268454 2006년09월29일 일본(JP)  
(56) 선행기술조사문헌  
KR1020020084159 A\*  
US20060027790 A1\*  
\*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자  
혼다 기켄 교교 가부시카이사  
일본국 도쿄도 미나토구 미나미아오야마 2초메 1  
반 1고  
쇼와 덴코 가부시카이사  
일본국 도쿄도 미나토구 시바다이몬 1초메 13반  
9고  
(72) 발명자  
이노 타다시  
일본 카나가와켄 카와사키시 카와사키쿠 오카와쵸  
5-1 쇼와 덴코 가부시카이사 나이  
이즈미 겐이치로  
일본 카나가와켄 카와사키시 카와사키쿠 오카와쵸  
5-1 쇼와 덴코 가부시카이사 나이  
(뒷면에 계속)  
(74) 대리인  
하영욱

전체 청구항 수 : 총 19 항

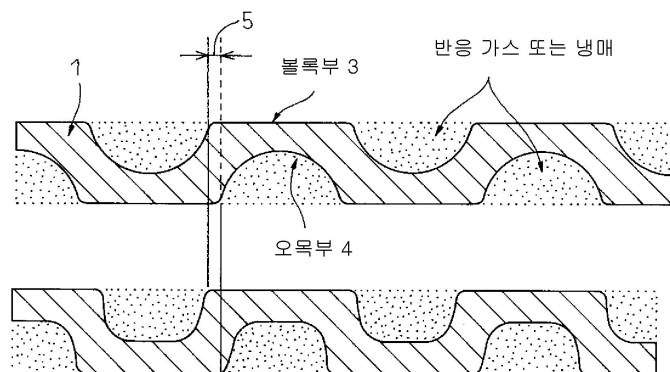
심사관 : 조기윤

(54) 발명의 명칭 연료 전지용 세퍼레이터 및 그것의 제조 방법

(57) 요약

본 발명은 출력 밀도를 향상시키기 위해서 필요한 경량 및 소형 제조를 확보하고, 가스 시일 부재를 사용하지 않고 적층을 가능하게 하는 고성능 연료 전지용 세퍼레이터, 및 그 제조 방법을 제공한다. 탄소질 재료로 고충전된 열가소성 수지 조성물을 얇은 시트 형태로 형성하고, 상기 시트를 용융 상태로 가열하고, 상기 용융물을 고속으로 냉각 형상화하는 가공 방법에 의해서, 파형의 유로를 갖는 얇은 세퍼레이터를 고속으로 성형할 수 있고, 경량, 소형 및 고성능 연료 전지용 세퍼레이터를 제공할 수 있다. 또한, 시트를 다층 구조로 형성하고 그것을 가열 용착함으로써, 가스 확산 전극과의 접촉 저항을 감소시킬 수 있고, 가스켓을 필요로 하지 않는 소형의 일체형 연료 전지용 세퍼레이터를 제공할 수 있다.

대표도 - 도2



(72) 발명자

**타나카 유키히토**

일본 사이타마켄 와코시 츄오 1쵸메 4-1 가부시키  
가이샤 혼다 기쥬쓰켄큐쇼 나이

**카와무라 토시키**

일본 사이타마켄 와코시 츄오 1쵸메 4-1 가부시키  
가이샤 혼다 기쥬쓰켄큐쇼 나이

---

## 특허청구의 범위

### 청구항 1

도전성 수지 조성물을 포함하고, 또한 도전성 유로부를 포함하는 연료 전지용 세퍼레이터로서:

상기 도전성 수지 조성물은 탄소질 재료(A) 및 열가소성 수지 조성물(B)를 질량비 (A)/(B)=2~20으로 포함하고, 또한 상기 (A)와 (B)의 총질량이 조성물 중의 80~100질량%를 차지하고;

상기 도전성 유로부는 그 표면 및 이면에 각각 유로용 홈을 구성하는 오목부 및 볼록부를 갖는 표리 비대칭의 파형 형상을 갖고;

상기 도전성 유로부는 0.05~0.5mm의 두께를 갖고, 최대 두께/최소 두께의 비는 1~3이고; 또한

상기 열가소성 수지 조성물(B)는, 폴리프로필렌, 폴리에틸렌, 폴리부텐, 폴리메틸펜텐 및 신디오택틱 폴리스티렌으로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1종 이상의 열가소성 수지를 50질량% 이상, 및 스티렌 부타디엔 고무, 에틸렌-프로필렌 코폴리머, 에틸렌-옥텐 코폴리머, 에틸렌-부텐 코폴리머, 프로필렌-부텐 코폴리머, 에틸렌-프로필렌-디엔 3원 중합 고무, 에틸렌 부타디엔 고무, 이소프렌 고무, 부타디엔 고무, 스티렌계 열가소성 엘라스토머, 올레핀계 열가소성 엘라스토머 및 1,2-폴리부타디엔계 열가소성 엘라스토머로부터 선택되는 1종 이상의 엘라스토머를 1~30질량% 포함하는 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

### 청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 유로부의 밀도는 1.2~2.5g/cm<sup>3</sup>인 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

### 청구항 3

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

상기 유로부의 오목부는 단면에 있어서 곡면 형상을 갖고, 상기 볼록부는 평탄면을 갖는 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

### 청구항 4

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

상기 유로부의 단면에 있어서, 볼록부의 평탄면이 표면과 이면 사이에서 0.05~0.5mm 겹쳐지도록 오프셋이 형성되는 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

### 청구항 5

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

상기 열가소성 수지 조성물(B)는 -20℃ 이하의 유리 전이 온도를 갖는 성분을 포함하는 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

### 청구항 6

삭제

### 청구항 7

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

상기 엘라스토머 성분(C)의 평균 입자 지름은 0.01~5 $\mu$ m이고, 상기 탄소질 재료(A)의 평균 입자 지름 또는 평균 섬유 길이보다 작은 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

### 청구항 8

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

상기 열가소성 수지 조성물(B)는 용점이 100℃ 이상인 결정성 탄화수소계 폴리머를 포함하는 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

#### 청구항 9

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

상기 탄소질 재료(A)는 상기 탄소질 재료(A)의 전체 질량에 대하여 0.05~5질량%의 붕소를 포함하는 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

#### 청구항 10

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

상기 탄소질 재료(A)는 지름이 각각 200nm 이하인 기상 성장 탄소 섬유 및 탄소 나노튜브 중 하나 이상을 상기 탄소질 재료(A)의 전체 질량에 대하여 0.1~50질량% 포함하는 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

#### 청구항 11

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

제 1 조성을 갖는 제 1 도전성 수지 조성물층 및 상기 제 1 조성과 다른 조성을 갖는 제 2 도전성 수지 조성물층이 적층되는 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

#### 청구항 12

제 11 항에 있어서,

상기 제 1 도전성 수지 조성물층 및 제 2 도전성 수지 조성물층 중 하나 또는 모두에 천연 흑연이 함유되는 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

#### 청구항 13

제 11 항에 있어서,

상기 세퍼레이터는 상기 제 1 도전성 수지 조성물층이 중심층이고, 상기 제 2 도전성 수지 조성물층이 외층인 다층 구조를 갖고, 상기 제 2 도전성 수지 조성물층의 굽힘 탄성률이 상기 제 1 도전성 수지 조성물층의 굽힘 탄성률의 1/2 이하인 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

#### 청구항 14

제 13 항에 있어서,

상기 제 2 도전성 수지 조성물층의 용점은 상기 제 1 도전성 수지 조성물층의 용점보다 낮은 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

#### 청구항 15

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

가스 확산층과의 MEA의 접촉 저항은 2MPa의 가압 조건 하에서  $30\text{m}\Omega\text{cm}^2$  이하인 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

#### 청구항 16

탄소질 재료(A) 및 열가소성 수지 조성물(B)를 질량비 (A)/(B)=2~20으로 포함하고, 또한 상기 (A)와 (B)의 총 질량이 조성물 중의 80~100질량%를 차지하는 도전성 수지 조성물을 포함하는 시트를 상기 시트의 용점까지 가열하는 공정; 및

상기 가열된 시트를 상기 시트의 고화 온도 이하로 설정된 금형에 삽입한 다음, 상기 시트를 스탬핑 성형하여 상기 시트의 표면 및 이면 각각에 유로용 홈을 구성하는 오목부 및 볼록부를 갖는 표리 비대칭의 파형 형상을 형성하는 공정을 포함하는 연료 전지용 세퍼레이터의 제조 방법에 있어서,

상기 열가소성 수지 조성물(B)는, 폴리프로필렌, 폴리에틸렌, 폴리부텐, 폴리메틸펜텐 및 신디오택틱 폴리스티렌으로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1종 이상의 열가소성 수지를 50질량% 이상, 및 스티렌 부타디엔 고무, 에틸렌-프로필렌 코폴리머, 에틸렌-옥텐 코폴리머, 에틸렌-부텐 코폴리머, 프로필렌-부텐 코폴리머, 에틸렌-프로필렌-디엔 3원 중합 고무, 에틸렌 부타디엔 고무, 이소프렌 고무, 부타디엔 고무, 스티렌계 열가소성 엘라스토머, 올레핀계 열가소성 엘라스토머 및 1,2-폴리부타디엔계 열가소성 엘라스토머로부터 선택되는 1종 이상의 엘라스토머를 1~30질량% 포함하는 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터의 제조 방법.

#### 청구항 17

제 16 항에 있어서,

상기 시트의 두께는 0.05~2mm인 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터의 제조 방법.

#### 청구항 18

제 16 항 또는 제 17 항에 있어서,

상기 스탬핑 성형은 금형을 폐쇄한 후 증압의 완료까지 냉각 프레스 성형기에 의해서 10초 이하 동안 스탬핑 성형을 행하는 것임을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터의 제조 방법.

#### 청구항 19

제 16 항 또는 제 17 항에 있어서,

상기 시트는 조성이 다른 복수개의 층을 갖는 적층 시트인 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터의 제조 방법.

#### 청구항 20

제 16 항 또는 제 17 항에 기재된 연료 전지용 세퍼레이터의 제조 방법에 의해서 제조되는 연료 전지용 세퍼레이터로서:

상기 세퍼레이터는 0.5mm 이하의 두께를 갖고, 최대 두께/최소 두께의 비가 1~3인 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

### 명세서

#### 기술 분야

[0001] 본 발명은 경량이고, 소형이며, 도전성 및 기계적 특성이 우수한 탄소(탄소질) 수지 성형 세퍼레이터, 및 그것의 제조 방법에 관한 것이다.

#### 배경 기술

[0002] 최근, 환경 문제 및 에너지 문제의 관점으로부터 연료 전지가 주목을 받고 있다. 연료 전지는 수소 및 산소를 사용한 물의 전기 분해 역반응에 의해서 발전시키고 물만을 배출하는 청정 발전 장치이고, 이것은 전해질의 종류에 따라서 수종류로 분류되며, 이들 중에서 고체 폴리머 타입 연료 전지는 저온에서 작동하여 자동차 또는 전기 제품용으로 가장 유망하다. 이러한 연료 전지는 예를 들면, 폴리머 고체 전해질, 가스 확산 전극, 촉매 및 세퍼레이터를 각각 포함하는 단일 전지를 적층함으로써 제조되고, 이로써 고출력 발전을 달성할 수 있다.

[0003] 상술한 구성을 갖는 연료 전지는 단일 전지를 분류하기 위한 세퍼레이터를 갖는다. 세퍼레이터 상에는 연료 가스(예를 들면, 수소) 및 산화제 가스(예를 들면, 산소)를 공급하고 발생된 물(수증기)을 배출시키기 위한 유로(홈)가 형성되어 있는 것이 일반적이다. 따라서, 세퍼레이터는 이들 가스의 완전한 분리를 가능하게 하는 가스 불투과성이 높고 내부 저항을 감소시키기 위한 도전성이 높을 것이 요구된다. 또한, 세퍼레이터는 열 전도성, 내구성, 강도 등이 우수할 것이 요구된다.

[0004] 이들 요구를 만족시키기 위해서, 연료 전지용 세퍼레이터는 금속 재료 및 탄소 재료의 모든 측면에서 연구되고 있다. 금속 재료는 비중이 크지만, 우수한 기계적 특성 때문에 얇은 세퍼레이터를 제조할 수 있고, 또한 도전성이 높다는 점에서 유리하다. 그러나, 내식성에 있어서 문제가 있다. 내식성이 우수한 표면 처리 또는 조성물의

고안에 대한 연구가 이루어지고 있다.

- [0005] 한편, 탄소 재료에 관해서도 많은 연구가 이루어지고 있고, 연료 전지 세퍼레이터용 재료의 예로는 팽창 흑연 시트를 프레스 성형함으로써 얻어진 성형품, 탄소 소결체에 수지를 함침시켜 경화시킴으로써 얻어진 성형품, 열 경화성 수지를 소성시킴으로써 얻어진 유리상 탄소, 및 탄소 분말과 수지를 혼합하고 그 혼합물을 성형함으로써 얻어진 성형품이 열거된다.
- [0006] 예를 들면, 특허 문헌 1에는 바인더 재료를 탄소질 분말에 첨가하고, 이들을 가열 하에 혼합하고, 그 혼합물을 CIP 성형(냉간 등방압 프레스), 소성 및 흑연화시키고, 얻어진 등방성 흑연 재료에 열 경화성 수지를 함침하고 경화시킨 후에 커팅에 의해서 홈을 새기는 복잡한 공정이 개시되어 있다.
- [0007] 또한, 특허 문헌 2에는 탄소 분말 또는 탄소 섬유 함유 페이퍼 시트에 열 경화성 수지를 함침하고, 상기 페이퍼 시트를 적층 및 압착시키고, 그 적층체를 소성시키는 기술이 개시되어 있고, 특허 문헌 3에는 세퍼레이터 형상의 금형에서 페놀 수지를 사출 성형하고, 그 성형품을 소성시키는 기술이 개시되어 있다.
- [0008] 이들 예에서와 같이 소성을 통해서 얻어진 이러한 재료는 높은 도전성 및 높은 내열성을 나타내지만, 소성은 시간이 오래 걸려 생산성이 낮은 문제 또는 취성 파괴가 쉽게 발생하는 문제가 있다. 또한, 커팅이 필요한 경우, 양산성이 감소되어 비용이 상승한다. 이러한 이유로, 상기 재료는 앞으로 보급하기 어려울 것이다.
- [0009] 한편, 연료 전지 세퍼레이터의 도전성을 지배하는 요소인 접촉 저항의 저감이 중요하다. 세퍼레이터 구조를 고안함으로써 접촉 저항을 저감시키기 위한 몇몇의 시도가 이루어져 왔다. 예를 들면, 특허 문헌 4에는 세퍼레이터 표면을 도전성이 높은 금속 또는 탄소로 피복하는 기술이 개시되어 있고, 특허 문헌 5에는 도전성 수지 조성물의 성형품의 표면에 도전성 폴리머를 도포하는 기술이 개시되어 있고, 특허 문헌 6에는 표면에 도전성 재료를 도포하거나 그 내부에 세로 방향으로 매립시키는 기술이 개시되어 있다.
- [0010] 또한, 특허 문헌 7에는 세퍼레이터 표면 상의 수지 풍부층(수지가 풍부한 층)을 커팅하여 상기 표면 상의 탄소 분말의 면적비를 증가시키는 기술이 개시되어 있고, 특허 문헌 8에는 바인더용으로 고무를 사용하여 접촉면에 대한 접착을 강화시키는 기술이 개시되어 있고, 특허 문헌 9에는 탄소계 재료로 구성된 발전부 및 전기 비전도성 폴리머 재료로 구성된 외부 프레임을 갖는 세퍼레이터가 인서트 성형에 의해서 가공되는 기술이 개시되어 있고, 특허 문헌 10에는 세퍼레이터 및 가스켓이 일체화되는 기술이 개시되어 있다.
- [0011] [특허 문헌 1] 일본 특허 공개 평 8-222241호 공보
- [0012] [특허 문헌 2] 일본 특허 공개 소 60-161144호 공보
- [0013] [특허 문헌 3] 일본 특허 공개 2001-68128호 공보
- [0014] [특허 문헌 4] 일본 특허 공개 2001-196076호 공보
- [0015] [특허 문헌 5] 일본 특허 공개 2002-8685호 공보
- [0016] [특허 문헌 6] 일본 특허 공개 2001-52721호 공보
- [0017] [특허 문헌 7] 일본 특허 공개 2003-282084호 공보
- [0018] [특허 문헌 8] 일본 특허 공개 2001-216977호 공보
- [0019] [특허 문헌 9] 국제 특허 01/80339호
- [0020] [특허 문헌 10] 일본 특허 공개 2005-235631호 공보
- [0021] 상술한 바와 같이, 종래 연료 전지용 세퍼레이터는 특히 높은 도전성, 가스 불투과성, 강한 내식성 및 낮은 비용을 만족하도록 요구된다. 또한, 제한된 공간에서 높은 성능을 발휘할 수 있는 경량 및 소형 세퍼레이터가 요구된다.
- [0022] 이들 요구를 만족시키기 위해서, 커팅 단계를 요구하지 않는 수지 성형 타입 탄소계 재료가 주목받고 있고, 그것의 개발이 진행되고 있다. 그러나, 도전성 부여 재료의 충전량은 높은 도전성을 나타내기 위해서 크게 증가될 필요가 있지만, 수지 함량의 저감은 성형성을 유지하기 위해서는 한계가 있어 충분히 높은 도전성이 얻어질 수 없다. 또한, 탄소계 세퍼레이터는 금속에 비하여 비중이 낮아서 경량화에 유리하게 기여할 수 있지만, 두께가 저감되는 경우에는 균열이 쉽게 발생하여 가스 차단 신뢰성이 감소한다. 이렇게, 금속 세퍼레이터 만큼 얇은 세퍼레이터가 제조되기 어렵다.

- [0023] 연료 전지 적층을 제조하는 경우에 있어서, 가스의 누출을 방지하기 위해서 가스켓 또는 패킹이 주로 사용되지만, 제조 단계의 수가 증가하고 공정이 번거로워지므로 이러한 가스켓 또는 패킹을 사용하지 않는 구조가 요구된다.
- [0024] 또한, 종래 세퍼레이터의 경우에 있어서, 도 12에 나타내어진 바와 같이 유로는 표리 대칭인 형태를 갖고, 두께가 크게 불균일하여서 재료의 점도가 높은 경우에는 가공성이 나빠서 두꺼운 벽부와 얇은 벽부 사이에서 밀도 차이가 쉽게 생긴다. 이러한 방법에 있어서, 우수한 표면 정밀도를 갖는 세퍼레이터를 성형하기 위해서는 높은 유동성이 요구된다.
- [0025] 본 발명의 목적은 종래 기술의 결점을 극복하고, 경량, 소형 및 고성능 연료 전지 세퍼레이터 및 그것의 제조 방법을 제공하는 것이다.

### 발명의 상세한 설명

- [0026] 본 발명자들은 예의 연구의 결과로서, 파형 유로를 갖는 얇은 세퍼레이터는 탄소질 재료로 고충전된 열가소성 수지 조성물을 얇은 시트 형태로 성형하고, 상기 시트를 용융 상태로 가열하고, 상기 용융물을 고속으로 냉각 형상화하는 가공 방법에 의해서 고속으로 성형할 수 있다는 것을 발견했고; 또한, 이러한 얇은 파형 세퍼레이터는 상술한 종래 기술의 문제를 해소하는데 매우 효과적이라는 것을 발견했다. 이러한 발견에 기초하여 본 발명을 완성했다.
- [0027] 본 발명자들은 연구를 더 진행하였고, 그 결과, 특히 유로를 두께 불균일이 적은 파형 형상으로 형성한 경우, 상기 공정은 재료를 거의 유동시키지 않고 형상만을 변화시키기는 것이어서 필러로 고충전된 고점도 재료의 적용이 최적이라는 것을 발견했고, 또한 상술한 구조를 갖는 본 발명의 얇은 세퍼레이터는 탄소질 재료로 고충전되어 매우 높은 열 전도성을 확보하여 급속하게 고화시킬 수 있기 때문에 스탬핑 성형에 의한 고속 냉각 형상화가 효과적인 것을 발견했다.
- [0028] 또한, 본 발명자들은 시트를 다층 구조로 형성하는 경우에 가스 확산 전극과의 접촉 저항이 저감될 수 있는 것을 발견했다.
- [0029] 즉, 본 발명은 예를 들면, 이하 실시형태[1]~[20]의 실시형태를 포함한다.
- [0030] [1] 도전성 수지 조성물을 포함하고, 또한 도전성 유로부를 포함하는 연료 전지용 세퍼레이터로서:
- [0031] 상기 도전성 수지 조성물은 탄소질 재료(A) 및 열가소성 수지 조성물(B)를 질량비 (A)/(B)=1~20으로 포함하고, 또한 상기 조성물 중 (A)와 (B)의 총질량이 80~100질량%를 차지하고;
- [0032] 상기 도전성 유로부는 그 표면 및 이면에 각각 유로용 홈을 구성하는 오목부 및 볼록부를 갖는 파형 형상을 갖고; 또한
- [0033] 상기 도전성 유로부는 0.05~0.5mm의 두께를 갖고, 최대 두께/최소 두께의 비는 1~3인 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0034] [2] 상기 [1]에 있어서,
- [0035] 상기 유로부의 밀도는 1.2~2.5g/cm<sup>3</sup>인 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0036] [3] 상기 [1] 또는 [2]에 있어서,
- [0037] 상기 유로부의 오목부는 단면에 있어서 곡면 형상을 갖고, 상기 볼록부는 평탄면을 갖는 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0038] [4] 상기 [1]~[3] 중 어느 하나에 있어서,
- [0039] 상기 유로부의 단면에 있어서, 볼록부의 평탄면이 표면과 이면 사이에서 0.05~0.5mm 겹쳐지도록 하는 오프셋(offset)이 형성되는 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0040] [5] 상기 [1]~[4] 중 어느 하나에 있어서,
- [0041] 상기 열가소성 수지 조성물(B)는 -20℃ 이하의 유리 전이 온도를 갖는 성분을 포함하는 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0042] [6] 상기 [1]~[5] 중 어느 하나에 있어서,



- [0043] 상기 열가소성 수지 조성물(B)는 상기 열가소성 수지 조성물(B)의 전체 질량에 대하여 0.05~30질량%의 엘라스토머 성분(C)을 포함하는 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0044] [7] 상기 [6]에 있어서,
- [0045] 상기 엘라스토머 성분(C)의 평균 입자 지름은 0.01~5 $\mu$ m이고, 상기 탄소질 재료(A)의 평균 입자 지름 또는 평균 섬유 길이보다 작은 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0046] [8] 상기 [1]~[7] 중 어느 하나에 있어서,
- [0047] 상기 열가소성 수지 조성물(B)는 용점이 100℃ 이상인 결정성 탄화수소계 폴리머를 포함하는 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0048] [9] 상기 [1]~[8] 중 어느 하나에 있어서,
- [0049] 상기 탄소질 재료(A)는 상기 탄소질 재료(A)의 전체 질량에 대하여 0.05~5질량%의 붕소를 포함하는 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0050] [10] 상기 [1]~[9] 중 어느 하나에 있어서,
- [0051] 상기 탄소질 재료(A)는 지름이 각각 200nm 이하인 기상 성장 탄소 섬유 및 탄소 나노튜브 중 적어도 어느 하나를 상기 탄소질 재료(A)의 전체 질량에 대하여 0.1~50질량% 포함하는 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0052] [11] 상기 [1]~[10] 중 어느 하나에 있어서,
- [0053] 제 1 조성을 갖는 제 1 도전성 수지 조성물층 및 상기 제 1 조성과 다른 조성을 갖는 제 2 도전성 수지 조성물층이 적층되는 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0054] [12] 상기 [11]에 있어서,
- [0055] 상기 제 1 도전성 수지 조성물층 및 제 2 도전성 수지 조성물층 중 하나 또는 모두에 천연 흑연이 함유되는 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0056] [13] 상기 [11] 또는 [12]에 있어서,
- [0057] 상기 세퍼레이터는 상기 제 1 도전성 수지 조성물층이 중심층이고, 상기 제 2 도전성 수지 조성물층이 외층인 다층 구조를 갖고, 상기 제 2 도전성 수지 조성물층의 굽힘 탄성률이 상기 제 1 도전성 수지 조성물층의 굽힘 탄성률의 1/2 이하인 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0058] [14] 상기 [13]에 있어서,
- [0059] 상기 제 2 도전성 수지 조성물층의 용점은 상기 제 1 도전성 수지 조성물층의 용점보다 낮은 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0060] [15] 상기 [1]~[14] 중 어느 하나에 있어서,
- [0061] 가스 확산층과의 MEA의 접촉 저항은 2MPa의 가압 조건 하에서 30m $\Omega$ cm<sup>2</sup> 이하인 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0062] [16] 탄소질 재료(A) 및 열가소성 수지 조성물(B)를 질량비 (A)/(B)=1~20으로 포함하고, 또한 상기 조성물 중 (A)와 (B)의 총질량이 80~100질량%를 차지하는 도전성 수지 조성물을 포함하는 시트를 상기 시트의 용점까지 가열하는 공정; 및
- [0063] 상기 가열된 시트를 상기 시트의 고화 온도 이하로 설정된 금형에 삽입한 다음, 상기 시트를 스탬핑 성형하는 공정을 포함하는 연료 전지용 세퍼레이터의 제조 방법.
- [0064] [17] 상기 [16]에 있어서,
- [0065] 상기 시트의 두께는 0.05~2mm인 연료 전지용 세퍼레이터의 제조 방법.
- [0066] [18] 상기 [16] 또는 [17]에 있어서,
- [0067] 상기 스탬핑 성형은 금형을 폐쇄한 증압의 완료까지 냉각 프레스 성형기에 의해서 10초 이하 동안 스탬핑 성형을 행하는 것인 연료 전지용 세퍼레이터의 제조 방법.
- [0068] [19] 상기 [16]~[18] 중 어느 하나에 있어서,



- [0069] 상기 시트는 조성이 다른 복수개의 층을 갖는 적층 시트인 연료 전지용 세퍼레이터의 제조 방법.
- [0070] [20] 상기 [16]~[19] 중 어느 하나에 기재된 연료 전지용 세퍼레이터의 제조 방법에 의해서 제조되는 연료 전지용 세퍼레이터로서:
- [0071] 상기 스탬핑 성형은 상기 시트의 표면 및 이면 각각에 유로용 홈을 구성하는 오목부 및 볼록부를 갖는 파형 형상을 형성하고, 상기 세퍼레이터는 0.5mm 이하의 두께를 갖고, 최대 두께/최소 두께의 비가 1~3인 연료 전지용 세퍼레이터.
- [0072] 본 발명의 연료 전지용 세퍼레이터는 경량이고, 낮은 접촉 저항 및 세퍼레이터로서의 우수한 특성이 확보된다. 또한, 본 발명의 제조 방법에 따르면, 스탬핑 성형에 의해서 도전성 수지 조성물을 포함하는 시트의 양면 상에 홈을 형성하여 연료 전지용 세퍼레이터를 저비용으로 제공할 수 있다.

## 실시예

- [0087] 본 발명을 이하에 도면을 참조하여 상세하게 설명한다. 이하에 있어서, 특별히 언급하지 않는 한 양적 비를 나타내는 "%"는 질량 기준이다.
- [0088] (연료 전지용 세퍼레이터의 형상)
- [0089] 본 발명의 연료 전지용 세퍼레이터는 탄소질 재료(A) 및 열가소성 수지 조성물(B)를 포함하는 도전성 수지 조성물을 포함하고, 파형 유로부를 갖는다.
- [0090] (파형 형상)
- [0091] 파형 형상은, 도 1에 나타난 바와 같이, 각각 가스 유로를 구성하는 표면 및 이면 상의 홈이 면내에서 교대로 배열된 오목부와 볼록부를 갖는 구조를 나타낸다.
- [0092] 파형 세퍼레이터에 관해서, 금속제 세퍼레이터가 이미 공지되어 있다. 종래 도전성 수지 조성물은 높은 취성으로 인해 쉽게 파손되거나, 또는 낮은 유동성으로 인하여 두께를 저감시키기 어려워, 그들로부터 파형 세퍼레이터를 제조하기 어려울 수 있다.
- [0093] 본 발명에서, 0.5mm 이하의 시트의 형성을 가능하게 하는 도전성 열가소성 수지 조성물 및 시트로의 형성하기 위한 수단을 발견하고, 스탬핑 성형법을 사용함으로써 금속의 프레스 성형에서의 속도에 비하여 고속으로 세퍼레이터를 성형할 수 있게 되었다. 금속의 프레스 성형에 의해서는 제한된 형상의 유로만이 형성될 수 있지만, 본 발명에서는 시트를 용융하여 홈 또는 유로 패턴을 각종 형상으로 형성할 수 있다. 본 발명의 스탬핑 성형법을 사용함으로써, 저비용으로 두께가 작고 두께 변동이 작은 세퍼레이터의 제조가 가능해졌다.
- [0094] 본 발명의 연료 전지용 세퍼레이터는 일반적으로 행해지는 것과 같이 가스켓 또는 패킹을 사용함으로써 가스 시일을 형성해도 좋지만, 바람직하게는 가스켓 또는 패킹과 일체로 성형할 수 있다. 보다 바람직하게는, 가스 시일은 가스켓 또는 패킹을 사용하지 않고 용착시킴으로써 형성해도 좋고, 2~20개의 전지를 유니트화하여 경량의 패킹이 없는 적층을 제조할 수 있다. 즉, 일반적인 세퍼레이터에서는 가스 누출을 방지하기 위해서 패킹을 사용하지만, 본 발명에서는 가스 시일이 패킹없이 형성되어 부품의 수가 감소될 수 있어 더욱 경량화시킬 수 있다.
- [0095] 본 발명에 있어서, 단면 형상은 제 1 주면 상의 오목부의 바로 이면이 제 2 주면 상의 볼록부를 형성하여, 제 2 주면 상의 오목부의 저면이 제 1 주면 상의 볼록부 상면과 오목부 저면의 사이의 높이가 되는 형상인 것이 세퍼레이터가 얇아질 수 있으므로 바람직하다. 즉, 후술하는 도 13(a)에 나타난 형상이 도 13(b)에 나타난 형상보다 더욱 바람직하다.
- [0096] 단면 형상에 있어서, 제 1 주면 상의 오목부의 이면이 제 2 주면 상의 볼록부를 형성하고, 제 1 주면 상의 볼록부의 이면이 제 2 주면 상의 오목부를 형성하는 유로 부위가 평면적(세퍼레이터의 바로 위로부터의 투영 면적)의 30% 이상을 차지하는 것이 체적 출력 밀도를 향상시킬 수 있기 때문에 바람직하다.
- [0097] 오목부(홈)의 폭은 0.1~3mm인 것이 바람직하다. 상기 폭이 0.1mm 미만인 경우, 가스 또는 냉매의 압력 손실이 증가하는 경향이 있고, 반면에 상기 폭이 3mm를 초과하는 경우, 세퍼레이터의 두께를 증가시킴으로써 홈을 깊게 하지 않으면, MEA를 적층할 때 MEA가 홈으로 침입하기 쉬워지는 경향이 있다.
- [0098] 볼록부의 폭은 0.3~5mm인 것이 바람직하다. 상기 폭이 0.3mm 미만인 경우, MEA와 세퍼레이터 사이의 접촉 면적이 감소되어 발열을 야기하는 경향이 있고, 반면에 상기 폭이 5mm를 초과하는 경우, 가스의 확산성이 나빠지는

경향이 있다.

- [0099] 오목부의 깊이는 0.2~1mm인 것이 바람직하다. 상기 깊이가 0.2mm 미만인 경우, 가스의 압력 손실이 증가하는 경향이 있고, 반면에 상기 깊이가 1mm를 초과하는 경우, 세퍼레이터가 두꺼워져서 바람직하지 않은 경우도 있다.
- [0100] 오목부 폭/오목부 깊이의 비는 0.3~2.5인 것이 바람직하다. 상기 비가 0.3 미만인 경우, 가공성이 나빠지는 경향이 있고, 반면에 상기 비가 2.5를 초과하는 경우, MEA를 적층할 때 MEA가 홈으로 침입하는 경향이 있다.
- [0101] 오목부 및 볼록부의 폭은 홈(오목부)의 깊이 방향의 중심에서 측정했다.
- [0102] 제 1 주면 상의 홈과 제 2 주면 상의 홈은 치수가 동일해도 좋고 상이해도 좋다. 동일 주면 상의 오목부와 볼록부 사이의 폭의 상대비는 0.1~4인 것이 바람직하다. 상기 상대비가 0.1 미만인 경우, 접촉 저항이 증가하는 경향이 있고, 반면에 4를 초과하는 경우, 가스의 확산성이 나빠지는 경향이 있다.
- [0103] (용착)
- [0104] 본 발명에서 사용된 용어 "용착"은 접합할 2개의 물체 중에서 적어도 1개를 열에 의해 용융시키고, 이로써 이들 2개의 물체를 일체화시키는 것을 의미한다. 보다 구체적으로는, 접합할 하나만을 용융시키고, 다른 하나는 용융시키지 않을 경우에도 외력이 가해지지 않는 한 분리되지 않을 정도로 2개가 일체화되어 있으면 충분하다. 또한, 용착은 2개의 물체가 스팟 가열에 의해서 부분적으로 접합된 상태로 하여 외력이 가해지지 않는 한 일체화된 상태를 유지 할 수 있는 경우도 포함한다. 접촉하고 있는 한쪽 표면을 용융시키고, 그 용융된 재료가 다른 한쪽 표면 상의 요철이나 구멍에 침입하는 앵커 효과에 의해서 발생된 접합 상태도 포함된다. 또한, 가스 시일을 형성하기 위해서 요구되는 부분은 일반적으로 완전하게 접촉되어 가스 누출을 야기하지 않는 상태가 되게 할 필요가 있다. 2개의 물체의 접촉면이 용융되어 계면이 완전하게 제거된 접합 상태가 바람직하다. 본 발명에 있어서, 용착에 의해서 계면이 완전하게 제거된 경우라도 가스 시일이 유지되면 충분하다.
- [0105] (가스 유로부)
- [0106] 도 1에 있어서, 본 발명의 세퍼레이터에 있어서의 가스 유로부의 밀도는 바람직하게는 1.2~2.5g/cm<sup>3</sup>이고, 보다 바람직하게는 1.4~2.4g/cm<sup>3</sup>이며, 더욱 바람직하게는 1.6~2.3g/cm<sup>3</sup>여도 좋다. 가스 유로부의 밀도가 2.5g/cm<sup>3</sup>를 초과하는 경우, 중량이 증가하는 경향이 있고, 반면에 1.2g/cm<sup>3</sup> 미만인 경우, 도전성을 부여하기 위한 탄소질 재료의 배합량이 실질적으로 감소되고, 낮은 도전성을 갖는 세퍼레이터만이 얻어지는 경향이 있다.
- [0107] 본 발명의 연료 전지용 세퍼레이터의 가스 유로부의 두께(표면 상의 유로부의 임의의 점으로부터 이면 상의 유로부로 관통할 수 있는 최단 거리)는 0.05~0.5mm여도 좋고, 바람직하게는 0.05~0.4mm이며, 보다 바람직하게는 0.05~0.3mm이다. 두께가 0.05mm 미만인 경우, 가스 누출이 쉽게 발생할 수도 있고, 반면에 두께가 0.5mm를 초과하는 경우, 세퍼레이터의 중량이 증가할 수도 있다.
- [0108] (가스 유로부의 두께의 비)
- [0109] 가스 유로부의 최대 두께는 최소 두께의 1~3배여도 좋고, 바람직하게는 1~2배이며, 보다 바람직하게는 1~1.5배이다. 유로가 3배를 초과하는 불균일한 두께를 갖는 경우, 유로의 고속 형상화는 유동 성형으로 되어, 그 결과 얇은 세퍼레이터의 성형에 있어서 밀도 불균일의 발생 또는 잔류 압력 존재 등의 문제가 발생할 수도 있다.
- [0110] (가스 유로부의 형상)
- [0111] 유로부의 단면 형상으로는 오목부의 저면을 평탄하게 하여도 좋지만, 도 2에 나타난 바와 같이 오목부의 저면을 반지름이 0.05mm 이상인 곡면을 갖도록 형상화하는 경우, 생성된 물의 배출이 용이해져 바람직하다. 곡면의 반지름이 0.05mm 미만인 경우, 물의 배출을 용이하게 하는 효과가 감소되는 경향이 있다.
- [0112] 본 발명에 있어서, 유로부의 단면 형상에 있어서의 볼록부가 평탄한 표면을 갖는 실시형태는 연료 전지를 구성하는 MEA(Membrane Electrode Assembly: 막 전극 조립체)와의 접촉 저항이 감소될 수 있다는 점에서 유리하다. 원형 또는 타원형 형상의 볼록부의 경우에 있어서, MEA와의 접촉 면적은 감소되는 경향이 있다.
- [0113] (오프셋)
- [0114] 유로부의 균열, 붕괴, 및 크리프를 방지하기 위해서, 유로부 단면 형상에 있어서의 볼록부의 평탄면이 표면과 이면 사이에서 0.05~0.5mm 겹쳐지도록 도 2에 나타난 오프셋(즉, 표면 볼록부와 이면 볼록부 사이에 겹쳐진 부분)이 형성되는 것이 바람직하다. 오프셋은 보다 바람직하게는 0.08~0.4mm여도 좋고, 더욱 바람직하게는 0.1~0.3mm여도 좋다. 오프셋이 0.05 미만인 경우, MEA의 팽창 또는 수축으로 인하여 유로가 변형되기 쉬워지는

경향이 있고, 반면에 오프셋이 0.5mm를 초과하는 경우, 유로 사이의 거리가 증가되어 가스의 확산이 나빠지는 경향이 있다.

[0115] (도전성 수지 조성물)

[0116] 본 발명의 세퍼레이터를 구성하는 도전성 수지 조성물은 -20℃ 이하의 유리 전이 온도를 갖는 성분을 함유하는 것이 바람직하다. 유리 전이 온도는 보다 바람직하게는 -30℃ 이하이고, 더욱 바람직하게는 -40℃ 이하이다. 유리 전이 온도가 -20℃를 초과하는 경우, 세퍼레이터는 저온 특성이 나빠져 냉각 영역 또는 심하게 진동하는 환경에서 균열이 생길 수도 있다.

[0117] (유리 전이 온도)

[0118] 본 발명의 세퍼레이터에 있어서의 가스 유로부의 유리 전이 온도(이하에 "Tg"로서 간단히 기재됨)의 측정법은 특별하게 제한되지 않는다. 그 예로는 시차 주사 열량계에 의해서 발열량을 측정하여 Tg를 결정하는 방법, 열 분석기에 의해서 두께 방향에서의 열 팽창량을 측정하여 Tg를 결정하는 방법, 및 점탄성 측정 장치에 의해서 시험편의 동적 점탄성 및 손실 정점을 측정하여 손실 정점의 피크 온도로부터 Tg를 결정하는 방법이 열거된다. 본 발명에 있어서, Tg는 동적 점탄성 측정 장치(Bohlin C-VOR, Malvern Instruments에 의해서 제조됨)를 사용하여 손실 정점의 피크로부터 구했다. 보다 구체적으로, 측정 조건에 관해서는 비틀림 모드에서 주파수 0.001~1Hz 및 스트레인 0.01~1%에서 선형 점탄성의 영역에 들어가기 위한 조건을 결정하고, -100~100℃의 범위에서 5℃/분의 승온 속도로 스트레인 제어에 의해서 측정했다. 상기 측정에 있어서, 두께 1~2mm, 폭 10mm, 길이 32~36mm의 시험편이 사용되었다.

[0119] (가스 유로부의 접촉 저항)

[0120] 본 발명의 도전성 수지 조성물을 포함하는 세퍼레이터에 있어서, 가스 유로부는 가스 확산층과의 접촉 저항이 2MPa의 압력 조건 하에서 30mΩcm<sup>2</sup> 이하인 것이 바람직하다. 접촉 저항은 보다 바람직하게는 25mΩcm<sup>2</sup> 이하이고, 더욱 바람직하게는 20mΩcm<sup>2</sup> 이하이다. 접촉 저항이 30mΩcm<sup>2</sup>를 초과하는 경우, 전압이 크게 강하되어 출력의 감소를 초래할 수도 있다.

[0121] (접촉 저항 측정법)

[0122] 도 3은 접촉 저항 측정법을 나타내는 모식도이다. 시험편은 2매의 카본 페이퍼(TGP-H-060, Toray Industries, Inc.에 의해서 제조됨)에 끼우고, 이들을 2개의 금 도금 황동판에 더 끼우고, 이것에 2MPa의 압력을 균일하게 가하고, 금 도금 황동판 사이에 1A의 정전류를 관통 방향으로 통과시켜서 카본 페이퍼 사이의 전압을 측정하고 식 1에 의해서 접촉 저항을 산출했다. 카본 페이퍼 및 금 도금 황동판 각각의 면적은 세퍼레이터의 크기에 따라서 임의로 설정할 수 있지만, 본 발명에 있어서는 20mm<sup>2</sup>의 전극 면적에서 측정했다.

[0123] [식 1]

[0124]  $R_c = (V/I) \times (S/2)$

[0125] 여기에서, R<sub>c</sub>는 접촉 저항(mΩcm<sup>2</sup>)이고, V는 전압(mV)이며, I는 전류(A)이고, S는 세퍼레이터와 카본 페이퍼(가스 확산층) 사이의 한 면 상의 접촉 유효 면적(cm<sup>2</sup>)이다.

[0126] (외층의 용접)

[0127] 가스 확산층과 세퍼레이터 사이의 접촉 저항을 감소시키기 위해서, 세퍼레이터의 표면 및 이면 중 적어도 한 면의 외층(제 2 도전성 수지 조성물층에 상당함)의 용접은 중심층(제 1 도전성 수지 조성물층에 상당함)의 용접보다 낮게 하는 것이 바람직하다. 외층의 용접은 중심층의 용접보다 바람직하게는 10℃ 이상, 보다 바람직하게는 20℃ 이상 낮게 한다. 외층의 용접이 중심층의 용접보다 높은 경우, 용착 강도가 감소할 수 있어 가스 확산층으로의 용착을 달성하기 어려워지는 경향이 있다. 외층을 가스 확산층에 용착시키는 경우에 있어서, 외층의 용접과 중심층의 용접 사이의 온도에서 가열을 행한다.

[0128] 외층의 용접은 100℃ 이상인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 120℃ 이상이다. 외층의 용접이 100℃ 미만인 경우, 연료 전지의 성능이 열화되는 경향이 있다. 외층의 두께는 0.1~0.001mm인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 0.05~0.001mm이다. 외층의 두께가 0.1mm를 초과하는 경우, 유로가 변형되기 쉽지만, 0.001mm 미만인 경우, 용착 강도가 향상되지 않는다. 이러한 구성의 예로는 외층이 중심층의 양측에 배치되는 3층 구조가 열거되지만, 가스 확산층에 용착하는 외층의 용접이 중심층의 용접보다 낮은 한 상기 구성은 3층 구조에 제한되는 것은 아니고, 4층 이상의 층을 포함하여도 좋다. 한 면에서만 가스 확산층과 접촉하는 경우에 있어서, 한 면 상의

외층만의 융점이 중심층의 융점보다 낮게 한 2층 구성이 사용되어도 좋다. 본 발명에서 사용되는 융점 측정법은 특별하게 제한되는 것은 아니지만, 예를 들면 JIS K7121에 기재된 DSC법에 의해 측정되어도 좋다. 본 발명에 있어서, 융점은 Perkin-Elmer에 의해서 제조된 DSC-7에 의해서 측정했다.

[0129] (적층 구성)

[0130] 도 4는 본 발명의 세퍼레이터를 사용한 적층 구성의 일례를 나타내는 모식 단면도이다. 도 4에서 사용된 MEA는, 도 5의 부분 확대도에 나타난 바와 같이, 예를 들면 고체 폴리머 전해질막의 양면에 촉매층을 접합시키고, 그 촉매층의 양면을 가스 확산층으로 작용하는 카본 페이퍼 등에 끼워 5층 구조를 제조하고, 그 외주를 절연성의 열가소성 수지 조성물로 피복함으로써 제조되는 것이 바람직하지만, 본 발명은 이것에 제한되는 것은 아니다. 도 5에 나타난 MEA는 프레임체부용 재료가 본 발명의 세퍼레이터에 함유된 성분 중 적어도 1종이 같은 폴리머를 함유하거나 또는 상용화제를 함유하는 열가소성 수지 조성물이거나, 또는 세퍼레이터를 구성하는 폴리머와 MEA 프레임체부용 재료가 혼화성 또는 상용성을 갖는 폴리머 쌍으로 작용하는 성분을 각각 함유하는 열가소성 수지 조성물인 구성을 사용함으로써 본 발명의 세퍼레이터에 용착 가능하게 하여, 도 4에 나타난 패키징이 없는 적층 유닛을 제조할 수 있다. 본 발명에서 사용되는 융점 측정법은 특별하게 제한되는 것은 아니지만, 융점은 예를 들면 JIS K7121에 기재된 DSC법에 의해서 측정해도 좋다. 본 발명에 있어서, 융점은 Perkin-Elmer에 의해서 제조된 DSC-7에 의해서 측정했다.

[0131] 혼화성이란 폴리머가 용융 및 혼합된 결과 단일상을 형성하는 능력을 갖는 것을 의미한다. 열역학적 필요 조건은 혼합의 깁스(Gibbs) 자유 에너지  $\Delta G$ 가 0 미만( $\Delta G < 0$ )인 것이고, 단일상인지의 여부는 산란법(예를 들면, 광 산란, X선 산란, 중성자 산란)에 의해서 확인할 수 있다(Polymer ABC Handbook, Kobunshi ABC Kenkyu Kai 편집, the Society of Polymer Science, 일본, p.4 및 p.196, D.R. Paul, Encycl. Polym. Sci. Eng., Vol.12, p.399, John Wiley & Sons(1988) 참조). 혼화성을 갖는 조합의 예로는 폴리프로필렌/폴리프로필렌(분자량, 분자량 분포 등이 다른 조합), 고밀도 폴리에틸렌/고밀도 폴리에틸렌(분자량, 분자량 분포 등이 다른 조합), 폴리페닐렌에테르/폴리스티렌, 폴리프로필렌/폴리부텐-1, 및 폴리메틸메타크릴레이트/폴리비닐아세테이트 등이 열거된다.

[0132] 상용성이란 폴리머가 비혼화성이지만, 폴리머 사이에서 어떤 계면 결합을 이루는 능력을 갖는 것을 의미한다. 상용성을 갖는 조합의 예로는 이하가 열거된다.

[0133] 1) 폴리머에 같은 세그먼트 구조를 갖는 분자쇄를 갖는 조합이다. 예를 들면, 폴리머가 폴리머 A와 폴리머 B의 형태로는 혼합될 수 없지만, A-B의 그래프트 코폴리머, 블록 코폴리머 또는 랜덤 코폴리머가 형성된 경우에는 폴리머는 폴리머 A 및 폴리머 B 모두와 상용화될 수 있어 부분적으로 분자가 얹힐 수 있다. 따라서, 상기 조합은 폴리머 A/A-B 코폴리머 및 폴리머 B/A-B 코폴리머 등의 조합이어도 좋다. 또한, A-B 코폴리머가 상용화제로서 작용하는 폴리머 A와 A-B 코폴리머의 혼합물/폴리머 B와 A-B 코폴리머의 혼합물의 조합이 사용되어도 좋다. 이러한 분류에 있어서의 조합의 구체예로는 폴리프로필렌/스티렌에틸렌부틸렌스티렌 코폴리머 및 폴리프로필렌/에틸렌프로필렌 고무가 열거된다.

[0134] 2) 용해도 파라미터의 차이가 1.0 미만인 조합(폴리머의 용해도 파라미터의 산출 방법에 관해서는 예를 들면, SP Chi Kiso?Oyo to Keisan Houhou(SP값의 기초 응용과 산출 방법), 5 및 6장, Joho Kiko Shuppan K.K.(2005년 3월) 참조). 용해도 파라미터의 차이가 작은 경우, 폴리머는 응집 에너지 밀도가 근접하여 잘 혼합될 수 있다. 이러한 조합의 예로는 부타디엔-아크릴로니트릴 고무(NBR)/폴리비닐클로리드(PVC)가 열거된다. NBR의 용해도 파라미터는 9.4이고, PVC의 용해도 파라미터는 9.5이며, 이들은 매우 근접하다. 또한, 폴리프로필렌/수소 첨가 스티렌부타디엔 고무도 이 분류에 포함된다.

[0135] 3) 폴리머 사이의 강한 상호 작용을 나타내는 조합, 즉, 반데르 발스력, 쌍극자/쌍극자 힘, 수소 결합, 전하 이동력, 이온/이온 상호 작용, 산/염기 힘 및 공유 결합 등의 분자간 상호 작용을 갖는 조합이다. 이러한 조합의 예로는 무수 말레산 변성 폴리에틸렌/폴리아미드, 폴리비닐클로리드/염소화 폴리에틸렌, 액정 폴리머/폴리부틸렌프탈레이트 및 폴리카르보네이트/아크릴로니트릴부타디엔스티렌 코폴리머 등이 열거된다.

[0136] 상용화제는 혼합될 수 없는 폴리머 A 및 폴리머 B용 계면활성제로서 작용하여 계면에서의 자유 에너지를 감소시키는 폴리머이다. 따라서, 혼화성 및 상용성을 갖는 폴리머도 상용화제로서의 기능을 갖는다.

[0137] 본 발명에 있어서, 세퍼레이터 및 MEA 프레임체부는 모두 적어도 1종의 동일한 폴리머를 함유하고, 적어도 1종은 상용화제를 함유하고, 또는 이들이 혼화성 또는 상용성을 갖는 한 쌍의 폴리머로서 작용하는 조합인 것이 바람직하다.



- [0138] (접착성 관능기)
- [0139] 계면의 강도를 향상시키기 위해서, 필요에 따라서 화학적 반응을 통해서 세퍼레이터 또는 MEA 프레임체부에 접착할 수 있는 관능기를 갖는 성분이 도입되어도 좋다. 이러한 접착성 관능기의 예로는 히드록실기, 카르복실기, 아미노기, 에폭시기, 이소시아네이트기, 글리시딜메타크릴레이트기, 카르보닐기, 아크릴기, 무수 말레산기, 실릴기 또는 아민계 관능기를 갖는 폴리머 또는 모노머가 열거되지만, 이들에 제한되는 것은 아니다. 이러한 성분을 함유함으로써 계면 강화 방법이 적용되어 열 이력에 의한 계면 박리가 보다 유효하게 억제될 수 있다.
- [0140] (성분(B)에 대한 성분(A)의 비)
- [0141] 본 발명에서 사용할 수 있는 도전성 수지 조성물에 있어서의 성분(B)에 대한 성분(A)의 비에 관해서, 성분(B)에 대한 성분(A)의 질량비((A)/(B)로서도 기재됨)는 1~20이어도 좋고, 바람직하게는 1.5~20이고, 보다 바람직하게는 2~20이다. 질량비(A)/(B)가 1 미만인 경우, 불충분한 도전성이 얻어지는 경향이 있고, 반면에 질량비(A)/(B)가 20을 초과하는 경우, 가공성이 열화되는 경향이 있다.
- [0142] (성분(A))
- [0143] 본 발명에서 사용되는 탄소질 재료인 성분(A)로는 카본 블랙, 탄소 섬유, 비결정성 탄소, 팽창 흑연, 인조 흑연, 천연 흑연, 키쉬 흑연, 기상 성장 탄소 섬유, 탄소 나노튜브 및 폴러렌으로부터 선택된 1종 또는 2종 이상의 조합이 열거된다.
- [0144] 상기 탄소질 재료 중 하나로서의 카본 블랙의 예로는 천연 가스 등의 불완전 연소, 또는 아세틸렌의 열분해에 의해 얻어지는 케첸 블랙 및 아세틸렌 블랙; 탄화수소 오일 또는 천연 가스의 불완전 연소에 의해 얻어지는 페니스 카본; 및 천연 가스의 열분해에 의해 얻어지는 썬덜 카본이 열거된다.
- [0145] 탄소 섬유로는 중유, 부생성 오일, 콜 타르 등으로부터 제조되는 피치 타입, 및 폴리아크릴로니트릴로부터 제조되는 PAN 타입이 열거된다.
- [0146] 비결정성 탄소를 얻기 위한 방법의 예로는 페놀 수지를 경화시키고 경화된 생성물을 소성 처리하여 분말로 분쇄하는 방법, 및 페놀 수지를 구상의 비결정성 분말 상태로 경화시키고 경화된 생성물을 소성 처리하는 방법 등이 열거된다. 도전성이 높은 비결정성 탄소를 얻기 위해서는 2000℃ 이상에서 가열 처리가 행해지는 것이 적합하다.
- [0147] 팽창 흑연 분말은 예를 들면, 천연 흑연 또는 열분해 흑연 등 결정 구조가 고도로 향상된 흑연을 농황산과 질산의 혼합액 또는 농황산과 과산화수소수의 혼합액 등의 강한 산화성 용액에 침지하여 흑연 층간 화합물을 제조하고, 물로 세정한 후에 상기 화합물을 급속으로 가열하여 흑연 결정을 C축 방향으로 팽창시킴으로써 얻어진 분말이나, 또는 상기 분말을 일단 시트로 압연하고 상기 시트를 분쇄함으로써 얻어진 분말이다.
- [0148] 키쉬 흑연은 열 급속 예비 처리 등에서 용융된 선철의 온도 강하에 수반하여 침전된 평면적으로 결정화된 탄소이다. 키쉬 흑연은 슬러그나 산화철에서 혼합된 물질로서 발생되므로, 고순도 키쉬 흑연은 선광 처리에 의해서 회수되고, 더 분쇄되어 용도에 적합한 사이즈의 분말로 마무리된다.
- [0149] 인조 흑연을 얻기 위해서, 우선 코크스를 제조하는 것이 일반적이다. 코크스의 원료에 있어서는 석유계 피치, 석탄계 피치 등이 사용된다. 이러한 원료는 코크스로 탄화된다. 코크스로부터 흑연 분말을 형성하는 방법의 예로는 일반적으로 코크스를 분쇄한 후 흑연화하는 방법, 코크스 자체를 흑연화한 후 그것을 분쇄하는 방법, 및 코크스에 바인더를 첨가하고 그 혼합물을 성형하여 소성시키고, 소성된 생성물(코크스 및 이렇게 소성된 생성물은 총괄적으로 코크스 등이라고 부름)을 흑연화 처리한 후 분말로 분쇄하는 방법을 열거할 수 있다. 원료 코크스 등에 있어서, 결정은 가능한 한 발달되지 않는 것이 바람직하므로, 2000℃ 이하, 바람직하게는 1200℃ 이하에서 가열 처리되는 것이 적합하다.
- [0150] 사용될 수 있는 흑연화 방법의 예로는 분말을 흑연 도가니에 넣어 전류를 직접 통과시키는 아치슨(Acheson) 로를 사용하는 방법, 및 흑연 발열체에 의해서 분말을 가열하는 방법 등이 열거된다.
- [0151] (붕소)
- [0152] 탄소질 재료에 있어서, 0.05~5질량%의 붕소를 함유하는 것이 바람직하다. 붕소량이 0.05질량% 미만인 경우, 도전성이 높은 목적의 흑연 분말을 얻기 어려운 경향이 있고, 반면에 붕소가 5질량% 초과하여 함유되어 있을 경우에도 탄소 재료의 도전성 향상에 기여하기 어려운 경향이 있다. 탄소질 재료에 함유된 붕소량의 측정 방법은 특별하게 제한되지 않는다. 본 발명에 있어서, 유도 결합 플라즈마 발광 분광 분석법(이하, "ICP"로 간단하게 기

재됨) 또는 유도 결합 플라즈마 발광 분광 질량 분석법(이하, "ICP-MS"로 간단하게 기재됨)에 의해 측정된 값을 사용한다. 보다 구체적으로, 황산 및 질산을 첨가한 후의 샘플을 마이크로파 가열(230℃) 하에 분해시키고(다이제스터법), 과염소산(HClO<sub>4</sub>)을 첨가하여 더 분해시키며, 그 분해 생성물을 물로 희석하여 ICP 발광 분석기에 의해서 분석하여 붕소량을 측정한다.

[0153] 붕소를 함유시키는 방법으로는 B 단일 원소, B<sub>4</sub>C, BN, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 및 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> 등의 붕소원을 코크스, 피치, 천연 흑연, 인조 흑연, 키쉬 흑연, 팽창 흑연, 카본 블랙, 탄소 섬유, 기상 성장 탄소 섬유 및 탄소 나노튜브 등의 단일 물질, 또는 그들의 1종 이상의 혼합물에 첨가하고, 잘 혼합한 후에 얻어진 혼합물을 약 2300~3200℃에서 흑연화 처리하여 붕소를 탄소질 재료 중에 함유시킬 수 있다. 붕소 화합물이 불균일하게 혼합될 경우, 불균일한 흑연 분말이 얻어질 뿐만 아니라, 흑연화시에 소결이 발생할 가능성이 높다. 붕소 화합물을 균일하게 혼합하기 위해서는 붕소원은 50 $\mu$ m 이하, 바람직하게는 20 $\mu$ m 이하의 입자 지름을 갖는 분말로 형성한 후 코크스 등의 분말과 혼합하는 것이 바람직하다.

[0154] 붕소 및/또는 붕소 화합물이 흑연에 혼합되어 있는 한 붕소가 어떻게 함유되는지는 특별하게 제한되지 않지만, 적합한 예로는 붕소를 흑연 결정의 층 사이에 존재시키는 방식, 및 흑연 결정을 구성하는 탄소 원자의 일부를 붕소 원자로 치환하는 방식이 열거된다. 탄소 원자의 일부가 붕소 원자로 치환된 경우에 있어서, 붕소 원자와 탄소 원자 사이의 결합은 공유 결합 및 이온 결합 등의 어떠한 결합 형태여도 좋다.

[0155] (분쇄 방법)

[0156] 코크스, 인조 흑연 및 천연 흑연 등을 분쇄하기 위해서, 고속 회전 분쇄기(예를 들면, 해머 밀, 핀 밀, 케이지 밀), 각종 형태의 볼 밀(예를 들면, 롤링 밀, 진동 밀, 유성 밀), 교반 밀(예를 들면, 비드 밀, 어트리터, 순환 튜브형 밀, 환형 밀) 등을 사용해도 좋다. 또한, 미분쇄기인 스크린 밀, 터보 밀, 수퍼미크론 밀 또는 제트 밀도 조건을 선택함으로써 사용해도 좋다. 코크스, 천연 흑연 등은 이러한 분쇄기를 사용하여 분쇄하고, 이 때, 평균 입자 지름 및 입자 크기 분포는 분쇄 조건을 선택하고, 필요에 따라서 분말을 분급함으로써 제어하는 것이 바람직하다.

[0157] (분급 방법)

[0158] 코크스 분말, 인조 흑연 분말 및 천연 흑연 분말 등의 분급은 입자가 분리되는 한 어느 방법에 의해서 행해져도 좋지만, 예를 들면 체 분급법, 또는 강제 와류형 원심 분급기(예를 들면, 미크론 세퍼레이터, 터보플렉스, 터보 분급기, 수퍼 세퍼레이터), 또는 관성 분급기(예를 들면, 개량형 가상 임팩터, 엘보우 체트) 등의 기류 분급기를 사용해도 좋다. 습식 침강 분리법 또는 원심 분급법 등을 사용해도 좋다.

[0159] (기상 성장 탄소 섬유 등)

[0160] 본 발명에서 사용되는 성분(A)는 기상 성장 탄소 섬유 및/또는 탄소 나노튜브를 0.1~50질량%의 양으로 함유하는 것이 바람직하다. 상기 함유량은 보다 바람직하게는 0.1~45질량%이고, 더욱 바람직하게는 0.2~40질량%이다. 상기 함유량이 0.1질량% 미만인 경우, 도전성을 향상시키는 효과를 얻기 어려울 수 있고, 반면에 상기 함량이 50질량%를 초과하는 경우, 성형성이 나빠지는 경향이 있다.

[0161] 또한, 기상 성장 탄소 섬유 또는 탄소 나노튜브는 0.05~5질량%, 보다 바람직하게는 0.06~4질량%, 더욱 바람직하게는 0.06~3질량%의 양으로 붕소를 함유하는 것이 바람직하다. 상기 붕소 함량이 0.05질량% 미만인 경우, 붕소의 첨가에 의한 도전성 향상 효과가 작고, 반면에 붕소가 5질량%를 초과하여 첨가된 경우, 불순물의 양이 증가하여 다른 물리적 특성의 열화를 야기하기 쉬운 경향이 있다.

[0162] (기상 성장 탄소 섬유)

[0163] 기상 성장 탄소 섬유는, 예를 들면 벤젠, 톨루엔, 천연 가스 및 탄화수소계 가스 등의 유기 화합물을 원료로서 사용하여 페로센 등의 전이 금속 촉매의 존재 하에서 수소 가스와 함께 800~1300℃에서 열분해 반응을 행함으로써 얻어지는 섬유 길이가 약 0.5~10 $\mu$ m이고 섬유 지름이 200nm 이하인 탄소 섬유이다. 섬유 지름의 사이즈는 바람직하게는 160nm 이하이고, 보다 바람직하게는 120nm 이하여도 좋다. 200nm를 초과하는 사이즈는 높은 도전성을 얻는 효과가 감소하기 때문에 바람직하지 않다. 또한, 그 후 섬유를 약 2300~3200℃에서 흑연화하는 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 불활성 가스 분위기 하에서 붕소, 탄화붕소, 베릴륨, 알루미늄 및 규소 등의 흑연화 촉매와 함께 약 2300~3200℃에서 흑연화한다.

[0164] (탄소 나노튜브)

- [0165] 탄소 나노튜브는 최근 그 기계적 강도 뿐만 아니라 전계 방출 기능 및 수소 저장 기능이 산업에서 주목을 받고 있고, 또한 그 자기 기능도 주목을 받기 시작하고 있다. 또한, 이러한 타입의 탄소 나노튜브는 흑연 휘스커, 필라멘트상 카본, 흑연 섬유, 초미세 탄소 튜브, 탄소 튜브, 탄소 원섬유, 탄소 마이크로튜브, 탄소 나노섬유 등으로 불리우고, 약 0.5~100nm의 섬유 지름을 갖는다. 탄소 나노튜브는 튜브로는 구성하는 흑연막이 단층을 포함하는 단층 탄소 나노튜브, 및 흑연막이 다층을 포함하는 다층 탄소 나노튜브가 열거된다. 본 발명에 있어서, 단층 탄소 나노튜브 또는 다층 탄소 나노튜브 중 어느 하나가 사용될 수 있지만, 단층 탄소 나노튜브가 보다 높은 도전성 및 보다 높은 기계적 강도가 얻어지는 경향이 있기 때문에 바람직하다.
- [0166] 탄소 나노튜브는 예를 들면, Saito와 Bando, Carbon Nanotube no Kiso(탄소 나노튜브의 기초), pp.23~57, Corona Publishing Co., Ltd.(1998)에 기재된 아크 방전법, 레이저 증발법 및 열 분해법 등에 의해 탄소 나노튜브를 제작하고, 순도를 향상시키기 위해서 열수법, 원심 분리법, 한외 여과법 및 산화법 등에 의해 더 정제시킴으로써 얻어질 수 있다. 불순물을 제거하기 위해서, 보다 바람직하게는 탄소 나노튜브를 불활성 가스 분위기에서 약 2300~3200℃에서 고온 처리해도 좋고, 더욱 바람직하게는 붕소, 탄화붕소, 베릴륨, 알루미늄 및 규소 등의 흑연화 촉매와 함께 불활성 가스 분위기에서 약 2300~3200℃에서 고온 처리해도 좋다.
- [0167] (평균 입자 지름)
- [0168] 본 발명에 있어서, 성분(A)의 평균 입자 지름은 레이저 회절 산란법(Nikkiso Co., Ltd.에 의해서 제조된 장치 Microtrack HRA를 사용함)에 의해서 측정했다. 측정 조건은 샘플 50mg을 칭량하고, 50ml의 증류수에 첨가하고, 그것에 2% Triton(계면활성제, Wako Pure Chemical Industries, Ltd.에 의해서 제조됨) 수용액을 첨가하고, 3분 동안 초음파 분산시킨 후, 수 평균 입자 지름을 측정했다.
- [0169] 또한, 성분 A에 함유된 탄소질 섬유의 평균 섬유 길이의 측정에 있어서, SEM(JSM-5510, JEOL Ltd.에 의해서 제조됨)을 사용하여 관찰한 100개의 탄소 섬유를 섬유 길이의 화상 분석을 행하여 수 평균 섬유 길이를 측정했다(여기에서 사용된 섬유는 (장축의 길이/단축의 길이)의 비가 10 이상인 섬유를 나타냄).
- [0170] (성분(B))
- [0171] 본 발명에서 사용되는 성분(B)(열가소성 수지 조성물)에 함유된 주요 성분(50질량% 이상 차지하는 성분)으로는 아크릴로니트릴 부타디엔 스티렌 코폴리머, 폴리스티렌, 아크릴 수지, 폴리비닐클로라이드, 폴리이미드, 액정 폴리머, 폴리에테르 에테르 케톤, 불소 수지, 폴리올레핀, 폴리아세탈, 폴리아미드, 폴리에틸렌 테레프탈레이트, 폴리부틸렌 테레프탈레이트, 폴리카르보네이트, 폴리시클로올레핀, 폴리페닐렌술폰, 폴리에테르술폰, 폴리페닐렌옥사이드 및 폴리페닐렌술폰으로부터 선택되는 1종 또는 복수종의 조합을 포함하는 열가소성 수지가 열거된다.
- [0172] 이들 중에서, 주요 성분은 각각 융점이 100℃ 이상인 폴리올레핀, 불소 수지, 폴리부틸렌 테레프탈레이트, 폴리페닐렌술폰, 액정 폴리머, 폴리에테르 에테르 케톤, 폴리시클로올레핀 및 폴리에테르술폰, 그리고 유리 전이 온도가 100℃ 이상인 폴리카르보네이트, 폴리스티렌 및 폴리페닐렌옥사이드로부터 선택되는 1종 또는 복수종을 포함하는 열가소성 수지인 것이 바람직하다.
- [0173] 특히, 가수분해 내성을 향상시키기 위해서, 바람직하게는 융점이 100℃ 이상, 보다 바람직하게는 110℃ 이상, 더욱 바람직하게는 120℃ 이상인 결정성 탄화수소계 폴리머를 함유하는 것이 바람직하다. 융점이 100℃ 미만인 경우, 세퍼레이터가 크리프하는 경향이 있다.
- [0174] 융점은 그 측정에 있어서 특별하게 제한되지 않지만, Perkin-Elmer에 의해서 제조된 시차 주사 열량계(DSC7)를 사용하여 JIS K7121에 따라서 측정해도 좋다.
- [0175] 상기 결정성 탄화수소계 폴리머의 구체예로는 폴리프로필렌, 폴리에틸렌, 폴리부텐, 폴리메틸펜텐 및 신디오택틱 폴리스티렌이 열거된다.
- [0176] (엘라스토머)
- [0177] 본 발명에 있어서, 세퍼레이터는 성분(B)에 엘라스토머를 0.05~30질량%, 보다 바람직하게는 1~30질량%, 더욱 바람직하게는 5~25질량%의 양으로 함유시킴으로써 내균열성을 갖게 할 수 있다. 엘라스토머 함량이 0.05질량% 미만인 경우, 내충격성이 향상되지 않을 수 있고, 반면에 함량이 30질량%를 초과하는 경우, 불충분한 강성이 얻어져 유로의 변형 또는 가스 불투과성의 악화를 초래할 수 있다.
- [0178] 본 발명에서 사용되는 엘라스토머는 평균 입자 지름이 5μm 이하인 경우에 성분(B)에 쉽게 분산되는 경향이



있어, 그 평균 입자 지름을 성분(A)의 평균 입자 지름 또는 평균 섬유 길이보다 작게 함으로써, 도전성 및 강인성을 향상시킬 수 있다. 평균 입자 지름은 바람직하게는 4 $\mu$ m 이하이고, 보다 바람직하게는 3 $\mu$ m 이하여도 좋다. 평균 입자 지름이 5 $\mu$ m를 초과하는 경우, 세퍼레이터는 깨지기 쉽고, 도전성도 나빠지는 경향이 있다.

[0179] 본 발명에서 사용되는 엘라스토머는 상온 부근에서 고무상 탄성을 갖는 폴리머이다. 사용될 수 있는 엘라스토머는 예를 들면, 아크릴로니트릴 부타디엔 고무, 수소 첨가 니트릴 고무, 스티렌 부타디엔 고무, 에틸렌-프로필렌 코폴리머, 에틸렌-옥텐 코폴리머, 에틸렌-부텐 코폴리머, 프로필렌-부텐 코폴리머, 에틸렌-프로필렌-디엔 3원 중합 고무, 에틸렌 부타디엔 고무, 불소 고무, 이소프렌 고무, 실리콘 고무, 아크릴 고무, 부타디엔 고무, 고스티렌 고무, 클로로프렌 고무, 우레탄 고무, 폴리에테르계 특수 고무, 4불화에틸렌/프로필렌 고무, 에피클로로히드린 고무, 노르보르넨 고무, 부틸 고무, 스티렌계 열가소성 엘라스토머, 올레핀계 열가소성 엘라스토머, 우레탄계 열가소성 엘라스토머, 폴리에스테르계 열가소성 엘라스토머, 폴리아미드계 열가소성 엘라스토머, 1,2-폴리부타디엔계 열가소성 엘라스토머, 불소계 열가소성 엘라스토머 및 연결 아크릴 수지로부터 선택되는 1종 또는 2종 이상의 조합이다.

[0180] 이들 중에서, 내가수분해성의 관점에서 탄화수소계 엘라스토머, 즉 스티렌 부타디엔 고무, 에틸렌-프로필렌 코폴리머, 에틸렌-옥텐 코폴리머, 에틸렌-부텐 코폴리머, 프로필렌-부텐 코폴리머, 에틸렌-프로필렌-디엔 3원 중합 고무, 에틸렌 부타디엔 고무, 이소프렌 고무, 부타디엔 고무, 스티렌계 열가소성 엘라스토머, 올레핀계 열가소성 엘라스토머 및 1,2-폴리부타디엔계 열가소성 엘라스토머로부터 선택되는 1종 또는 2종 이상의 조합이 바람직하다.

[0181] 스티렌계 열가소성 엘라스토머의 구체예로는 수소 첨가 스티렌 부타디엔 고무, 스티렌 에틸렌-부틸렌 스티렌 블록 코폴리머, 스티렌 에틸렌-프로필렌 스티렌 블록 코폴리머, 올레핀 결정 에틸렌-부틸렌 올레핀 결정 블록 코폴리머, 스티렌 에틸렌-부틸렌 올레핀 결정 블록 코폴리머, 스티렌 이소프렌 스티렌 블록 코폴리머 및 스티렌 부타디엔 스티렌 블록 코폴리머가 열거된다. 이들 중에서, 수소 첨가 스티렌 부타디엔 고무, 스티렌 에틸렌-부틸렌 스티렌 블록 코폴리머 및 스티렌 에틸렌-프로필렌 스티렌 블록 코폴리머가 바람직하다.

[0182] (엘라스토머의 수 평균 입자 지름)

[0183] 성분(B)에 분산된 엘라스토머 성분의 수 평균 입자 지름은 초마이크로톰(ULTRACUT N, Reichert Inc.에 의해서 제조됨)에 의해서 액체 질소 동결 샘플의 단면으로부터 초박 절편을 제조하고, 오스뮴으로 염색하고, TEM(JEM-1230, JEOL Ltd.에 의해서 제조됨)을 통해서 분산상의 입자 지름을 관찰하고, TEM 화상을 화상 분석 시스템(Luzex, Nireco Corp.에 의해서 제조됨)에 의해서 분석함으로써 100개의 입자로부터 측정했다.

[0184] (첨가제)

[0185] 본 발명의 성분(B)인 열가소성 수지 조성물에 있어서, 항산화제, 할로젠 스캐빈저, 자외선 흡수제 등 중에서 1종 이상을 필요에 따라서 성분(B) 100중량부에 대하여 총량 0.01~5중량부의 범위에서 미리 첨가해도 좋다. 또한, 본 발명의 도전성 수지 조성물에는 경도, 강도, 도전성, 성형성, 내구성, 내후성, 내수성, 표면 특성 등을 향상시키기 위해서, 항산화제, 자외선 흡수제, 윤활제, 보강제(예를 들면, 유리 섬유, 휘스커, 유기 섬유, 탄소 섬유), 난연제, 계면활성제 및 표면 개질제(예를 들면, 친수성 부여제, 발수성 부여제, 슬라이딩성 부여제)로부터 선택되는 1종 또는 2종 이상의 조합을 포함하는 첨가제를 총량으로 0.01~20질량% 함유시켜도 좋다.

[0186] (도전성 수지 조성물의 제조 방법)

[0187] 본 발명에서 사용되는 도전성 수지 조성물은 그 제조 방법에 있어서 특별하게 제한되지 않지만, 예를 들면 상기 도전성 수지 조성물의 제조 방법에 있어서, 상술한 각 성분을 롤 밀, 압출기, 니더 및 반버리 믹서 등의 수지 분야에서 일반적으로 사용되는 혼련기를 사용함으로써 가능한 균일하게 혼합시키는 것이 바람직하다.

[0188] 본 발명에서 사용되는 도전성 수지 조성물은 혼련 또는 혼합 후, 성형기나 금형으로의 재료 공급을 용이하게 하기 위해서 분쇄 또는 조립화되어도 좋다. 분쇄에는 호모지나이저, 윌레이(Wiley) 분쇄기, 고속 회전 분쇄기(예를 들면, 해머 밀, 핀 밀, 케이지 밀, 블렌더) 등을 사용해도 좋고, 재료가 서로 응집되는 것을 방지하기 위해서 냉각시키면서 분쇄를 행하는 것이 바람직하다. 조립화에는 압출기, 루더(Ruder), 코니더 등을 사용하여 재료를 펠렛화하는 방법, 및 팬 타입 조립기 등을 사용하는 방법이 열거된다.

[0189] (세퍼레이터의 제조 방법)

[0190] 본 발명의 세퍼레이터를 제조하기 위해서, 탄소질 재료 및 열가소성 수지 조성물을 포함하는 도전성 수지 조성

물을 시트로 형성하고, 상기 시트를 용점으로 가열하고, 시트의 고화 온도 이하로 설정된 금형에 삽입한 후, 스탬핑 성형을 행하여 세퍼레이터를 얻는다.

[0191] 고속 성형에 적합한 시트의 두께는 0.05~2mm인 것이 바람직하다. 시트의 두께는 보다 바람직하게는 0.1~1.5mm이고, 더욱 바람직하게는 0.1~1.0mm이다. 상기 두께가 0.05mm 미만인 경우, 세퍼레이터는 깨지기 쉽고, 반면에 2mm를 초과하는 경우, 수율이 감소될 수도 있다.

[0192] (시트의 형상)

[0193] 시트의 형상에 있어서, 연속 시트 또는 적절한 사이즈로 커팅된 시트를 금형에 공급한다. 시트는 이전 공정에서 가열된다. 시트의 가열 방법은 제한되는 것은 아니지만, 예를 들면 적외선 가열, 유도 가열, 온풍 가열, 핫 플레이트 가열 및 마이크로파 가열로부터 선택되는 1종 이상의 방법에 의해서 행해도 좋다. 고속으로 가열을 행하기 위해서는 적외선 가열 및 유도 가열이 바람직하다. 보다 바람직하게는, 가열된 시트를 압출 성형기로부터 금형으로 직접 공급해도 좋다.

[0194] 시트의 가공 방법은 압출기에 의한 방법, 압출기와 압연 롤의 조합에 의한 방법, 및 분말상 재료를 롤에 공급하는 방법으로부터 선택된다. 압연 롤의 온도는 시트의 고화 온도 이하로 설정하는 것이 바람직하다.

[0195] 또한, 세퍼레이터의 성능 또는 정밀도는 2층 이상의 층을 포함하는 다층 구조로 시트를 형성함으로써 더욱 향상시킬 수 있다. 특히, 천연 흑연을 시트의 표층에 함유시킨 경우, 유동성 및 정밀도를 향상시킬 수 있다. 또한, 표층의 굽힘 탄성률이 중심층의 탄성률에 대한 비(표층 탄성률/중심층 탄성률)로 1/2 이하로 설정되는 경우, 적층시 접착성이 향상되어 접촉 저항이 감소되므로, 출력 밀도가 증가할 수 있다. 탄성률은 보다 바람직하게는 1/3 이하이고, 더욱 바람직하게는 1/5 이하이다. 탄성률이 1/2를 초과하는 경우, 적층시 접촉 저항이 나빠지는 경향이 있다. 탄성률에 관해서, 탄성률은 시험편 40×10×2mm, 시험 속도 1mm/분 및 지점-지점 거리 30mm의 조건 하에서 JIS K7171에 따라서 측정했다.

[0196] (시트의 가공)

[0197] 스탬핑 단계에 있어서, 용점으로 가열된 시트를 금형에 공급한 후 금형을 폐쇄하여 증압이 완료될 때까지의 시간은 10초 이하인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 5초 이하이고, 더욱 바람직하게는 3초 이하이다. 상기 시간이 10초를 초과하는 경우, 가열된 시트는 고화될 수 있다. 스탬핑 성형을 5초 이하 동안 압력을 유지함으로써 행하고, 성형품을 금형으로부터 꺼내어 도 2에 나타낸 파형 세퍼레이터를 얻을 수 있다.

[0198] 금형 온도는 재료의 고화 온도 이하로 설정하지만, 전사성 또는 정밀도를 보다 향상시키기 위해서는 온도를 상승 또는 저하시킬 수 있는 시스템에 의해서 금형 온도를 제어하는 것이 바람직하다.

[0199] (가스 시일부)

[0200] 가스 시일부는 압축 영구 변형이 80% 이하(JIS K6301에 따름, 시험 조건: 70℃, 25% 압축 변형, 500시간)인 절연성 수지 조성물로 형성하는 것이 적층을 클램핑하는 것만으로 가스 시일부를 시일링할 수 있으므로 바람직하다. 시일부는 용착시키는 것이 보다 바람직하다.

[0201] 가스 시일부를 용착시키는 방법에 있어서, 초음파, 레이저 및 고주파를 사용하는 것이 용착을 국부적으로 행하여 세퍼레이터의 변형을 회피할 수 있으므로 바람직하다. 초음파를 사용하는 경우에 있어서, 용착은 에너지 디렉터가 되는 삼각형 돌기에 배치된 용착 부위에 초음파 호른을 가압 상태에서 접촉시킴으로써 행할 수 있다. 레이저를 사용하는 경우에 있어서, 고출력 반도체 레이저 또는 YAG 레이저가 바람직하고, 용착은 레이저 투과성 조성물로 절연부를 형성하고 용착할 부위에 압력을 가하면서 레이저를 조사함으로써 행할 수 있다. 또한, 시일부는 가열 시일법 또는 접착제에 의해서 접합되어도 좋다.

[0202] 실시예

[0203] 본 발명은 이하 실시예를 참조하여 더욱 상세하게 설명되지만, 본 발명은 이들 실시예에 제한되는 것은 아니다.

[0204] 실시예 1

[0205] 탄소질 재료로서의 비침상 코크스인 MC Carbon K.K.에 의해서 제조된 MC Coke를 미분쇄기(Hosokawamicon Corp.에 의해서 제조됨)로 2~3mm의 사이즈로 조 분쇄하고, 조 분쇄된 생성물을 제트 밀(IDS2UR, Nippon Pneumatic Mfg. Co., Ltd.에 의해서 제조됨)에 의해서 미분쇄한 후, 분급에 의해서 소망의 입자 지름으로 조정했다. 5 $\mu$ m 이하의 입자는 터보 분급기(TC15N, Nisshin Engineering Inc.에 의해서 제조됨)를 사용하여 기류 분

급에 의해서 제거했다. 이어서, 상기 조정 후, 0.15kg의 탄화붕소( $B_4C$ )를 미분쇄된 생성물의 일부(14.85kg)에 첨가하고, 헨셀 믹서에서 800rpm으로 5분 동안 혼합하고, 이 혼합물의 1kg을 1.5L 체적의 뚜껑이 있는 흑연 도가니에 시일링했다. 그 다음, 상기 도가니를 흑연 가열기를 구비한 흑연화 로에 넣고, 로의 내부는 일단 진공으로 하여 아르곤 가스로 치환한 후, 아르곤 가스 분위기의 기류 하에서 내부 압력 1.2atm 및 온도 2800℃에서 분말을 흑연화했다. 상기 분말을 아르곤 가스 분위기에 더 방치하여 냉각한 후 꺼내어 0.94kg의 흑연 미세 분말(A1)을 얻었다. 얻어진 흑연 미세 분말의 평균 입자 지름은 20 $\mu m$ 였다.

[0206] 그 후, 흑연 미세 분말(A1) 85질량%, 폴리프로필렌(PP; SunAllomer(등록 상표) PX201N, SunAllomer Ltd.에 의해서 제조됨) 14.3질량% 및 수소 첨가 스티렌 부타디엔 고무(H-SBR; Dynaron(등록 상표) 1320P, JSR Corp.에 의해서 제조됨) 0.7질량%를 가압 니더(MIX-LABO, Moriyama Co., Ltd.에 의해서 제조됨)에서 온도 200℃ 및 40rpm에서 5분 동안 혼련하여 흑연 수지 조성물(C1)을 얻었다.

[0207] PP에 분산된 H-SBR의 수 평균 입자 지름을 TEM(JEM-1230, JEOL Ltd.에 의해서 제조됨)에 의해서 관찰하여 0.08 $\mu m$ 인 것을 알았다.

[0208] 얻어진 흑연 수지 조성물을 성형 온도 210℃에서  $\phi 40$  단축 압출기(Tanabe Plastics Machinery Co., Ltd.에 의해서 제조됨)를 사용하여 폭 60mm 및 두께 3mm인 시트로 형성했다. 또한, 210℃로 가열된 시트를 100℃의 압연 롤로 보내어 압연하여 폭 100mm 및 두께 1mm의 시트를 얻었다.

[0209] 1mm 두께의 시트를 할로겐 램프(Iwasaki Electric Co., Ltd.에 의해서 제조됨)에 의해서 240℃로 균일하게 가열하고, 상기 시트를 50-t 프레스 성형기에 배치된 95℃의 금형 셀 사이에 2초 동안 더 공급하고, 출력 80%의 압력 하에서 3초 동안 스탬핑해서 파형 세퍼레이터를 얻었다. 도 6은 얻어진 세퍼레이터의 유로의 단면 형상을 나타낸다. 유로부의 오목부는 곡면 형상을 갖고, 볼록부에서는 평탄부가 확보되고, 평탄부의 오프셋은 0.3mm였다. 세퍼레이터 형상은 면적이 65×65mm이고, 홈 폭이 1mm이며, 홈 깊이가 0.5mm인 것이었고, 한 면 상의 유로는 사행 유로였다. 도 7은 전체도를 나타낸다. 또한, 밀도는 1.83g/cm<sup>3</sup>이고, 유로의 최박부의 두께는 0.3mm이며, 최대 두께/최소 두께의 비는 1.4이고, 카본 페이퍼(TGP-H-060, Toray Industries, Inc.에 의해서 제조됨)와의 접촉 저항은 6m $\Omega$ cm<sup>2</sup>였다.

[0210] 비교예 1

[0211] 실시예 1에서의 것과 같은 흑연 수지 조성물을 사용하여 같은 방법으로 폭 60mm 및 두께 3mm의 시트를 성형 온도 210℃에서 압출 성형했다. 210℃로 가열된 시트를 100℃의 압연 롤로 보내어 압연하여 폭 100mm 및 두께 1.5mm의 시트를 얻었다.

[0212] 1.5mm 두께의 시트를 할로겐 램프에 의해서 240℃로 균일하게 가열하고, 상기 시트를 50-t 프레스 성형기에 배치된 95℃의 금형 셀 사이에 2초 동안 더 공급하고, 출력 80%의 압력 하에서 10초 동안 스탬핑해서 유로가 표리대칭인 도 8에 나타낸 단면 형상을 갖는 세퍼레이터를 얻었다. 유로부의 오목부는 곡면 형상을 갖지 않고, 볼록부에서는 평탄부가 확보되고, 평탄부의 오프셋은 2mm였다. 세퍼레이터 형상은 면적이 65×65mm이고, 홈 폭이 1mm이며, 홈 깊이가 0.5mm인 실시예 1과 같았고, 한 면 상의 유로부는 사행 유로였다(도 9). 또한, 밀도는 1.80g/cm<sup>3</sup>이고, 유로 최박부의 두께는 0.3mm이며, 최대 두께/최소 두께의 비는 4.3이고, 카본 페이퍼(TGP-H-060, Toray Industries, Inc.에 의해서 제조됨)와의 접촉 저항은 7.1m $\Omega$ cm<sup>2</sup>였다.

[0213] 실시예 2

[0214] 탄소질 재료로의 비침상 코크스인 MC Carbon K.K.에 의해서 제조된 MC Coke를 미분쇄기(Hosokawamicon Corp.에 의해서 제조됨)로 2~3mm의 사이즈로 조 분쇄하고, 조 분쇄된 생성물을 제트 밀(IDS2UR, Nippon Pneumatic Mfg. Co., Ltd.에 의해서 제조됨)에 의해서 미분쇄한 후, 분급에 의해서 소망의 입자 지름으로 조정했다. 5 $\mu m$  이하의 입자를 터보 분급기(TC15N, Nisshin Engineering Inc.에 의해서 제조됨)를 사용하여 기류 분급에 의해서 제거했다.

[0215] 이어서, 상기 조정 후, 0.75kg의 기상 성장 탄소 섬유(이하에, "VGCF"로 간단하게 기재됨, Showa Denko K.K.의 등록 상표) 및 0.15kg의 탄화붕소( $B_4C$ )를 미분쇄된 생성물의 일부(14.1kg)에 첨가하고, 헨셀 믹서에서 800rpm으로 5분 동안 혼합하고, 이 혼합물 1kg을 1.5L 체적의 뚜껑이 있는 흑연 도가니에 시일링했다. 그 다음, 상기 도가니를 흑연 가열기를 구비한 흑연화 로에 넣고, 로의 내부를 일단 진공으로 하여 아르곤 가스로 치환한 후, 아르곤 가스 분위기의 기류 하에서 내부 압력 1.2atm 및 온도 2800℃에서 분말을 흑연화했다. 상기 분말을 아르곤 가스 분위기에서 더 방치하여 냉각한 후, 꺼내어 0.94kg의 흑연 미세 분말(A2)을 얻었다.

- [0216] 그 후, 흑연 수지 조성물(A2)을 실시예 1에서 사용된 폴리프로필렌 및 수소 첨가 스티렌 부타디엔 고무와 함께 같은 조성비로 혼련시킴으로써 흑연 미세 분말(C2)을 제조하고, 또한 상기 조성물을 실시예 1과 같은 조건 하에서 시트로 형성하고 스탬핑 성형하여 실시예 1에서와 같은 파형 형상을 갖는 세퍼레이터를 얻었다. 얻어진 세퍼레이터에 있어서, 밀도는  $1.82\text{g}/\text{cm}^3$ 이고, 유로 최박부의 두께는  $0.3\text{mm}$ 이며, 최대 두께/최소 두께의 비는 1.4이고, 카본 페이퍼(TGP-H-060, Toray Industries, Inc.에 의해서 제조됨)와의 접촉 저항은  $5.4\text{m}\Omega/\text{cm}^2$ 였다.
- [0217] 비교예 2
- [0218] 실시예 2에서 것과 같은 흑연 수지 조성물을 비교예 1에서와 같은 방법으로 시트로 형성하고 스탬핑 성형하여 비교예 1에서의 것과 같은 형상의 세퍼레이터를 얻었다. 얻어진 세퍼레이터에 있어서, 밀도는  $1.81\text{g}/\text{cm}^3$ 이고, 유로 최박부의 두께는  $0.3\text{mm}$ 이며, 최대 두께/최소 두께의 비는 4.3이고, 카본 페이퍼(TGP-H-060, Toray Industries, Inc.에 의해서 제조됨)와의 접촉 저항은  $6.8\text{m}\Omega/\text{cm}^2$ 였다.
- [0219] 실시예 3
- [0220] 탄소질 재료로서의  $14.85\text{kg}$ 의 천연 흑연(고순도 천연 흑연 ACP, Nippon Graphite Industries, Ltd.에 의해서 제조됨, 평균 입자 지름:  $24\mu\text{m}$ ) 및  $0.15\text{kg}$ 의 탄화붕소( $\text{B}_4\text{C}$ )를 첨가하고, 헨셀 믹서에서  $800\text{rpm}$ 으로 5분 동안 혼합했다. 이어서,  $1\text{kg}$ 의 혼합물을  $1.5\text{L}$  체적의 뚜껑이 있는 흑연 도가니에 시일링한 후, 상기 도가니를 흑연 가열기를 구비한 흑연화 로에 넣고, 로 내부를 일단 진공으로 하여 아르곤 가스로 치환한 후 아르곤 가스 분위기의 기류 하에서 내부 압력  $1.2\text{atm}$ , 온도  $2800^\circ\text{C}$ 에서 분말을 흑연화했다. 상기 분말을 아르곤 가스 분위기에 더 방치하여 냉각한 후 분말을 꺼내어  $0.93\text{kg}$ 의 흑연 미세 분말(A3)을 얻었다.
- [0221] 그 후, 실시예 1에서 제조한 흑연 미세 분말(A1) 50질량%, 흑연 미세 분말(A3, 천연 흑연) 35질량%, 폴리프로필렌(SunAllomer(등록 상표) PC630A, SunAllomer Ltd.에 의해서 제조됨) 13.2질량% 및 프로필렌  $\alpha$ -올레핀 코폴리머(Tafmer(등록 상표) XM-7080, Mitsui Chemicals, Inc.에 의해서 제조됨) 1.8질량%를 가압 니더(MIX-LABO, Moriyama Co., Ltd.에 의해서 제조됨)에서 온도  $200^\circ\text{C}$  및  $40\text{rpm}$ 에서 5분 동안 혼련하여 흑연 수지 조성물(C3)을 얻었다. 이어서, 상기 흑연 수지 조성물(C3)을  $\phi 40$  단축 압출기를 사용해서 성형 온도  $210^\circ\text{C}$ 에서 폭  $60\text{mm}$  및 두께  $3\text{mm}$ 의 시트로 형성하고, 가열된 시트는  $100^\circ\text{C}$ 의 압연 롤에 보내어 압연하여 폭  $60\text{mm}$  및 두께  $0.1\text{mm}$ 의 시트를 얻었다. 또한, 실시예 1에서 압출 성형한 흑연 수지 조성물(C1)의 폭  $60\text{mm}$  및 두께  $3\text{mm}$ 의 시트는 상기 흑연 수지 조성물(C3)의 시트에 끼우고, 상기 시트 조합체를 압연 성형하여 폭  $100\text{mm}$  및 두께  $1\text{mm}$ 의 3층 시트(구조(층 두께): C3( $0.03\text{mm}$ )/C1( $0.94\text{mm}$ )/C3( $0.03\text{mm}$ ))를 얻었다.
- [0222] 이 3층 시트를 할로젠 램프에 의해서  $240^\circ\text{C}$ 로 균일하게 가열하고, 또한 상기 시트를 50-t 프레스 성형기에 배치된  $95^\circ\text{C}$ 의 금형 셀 사이에 2초 동안 공급하고, 출력 80%의 압력 하에서 3초 동안 스탬핑하여 실시예 1에서와 같은 파형 형상의 세퍼레이터를 얻었다. 얻어진 세퍼레이터에 있어서, 밀도는  $1.83\text{g}/\text{cm}^3$ 이고, 유로 최박부의 두께는  $0.3\text{mm}$ 이며, 최대 두께/최소 두께의 비는 1.4이고, 카본 페이퍼(TGP-H-060, Toray Industries, Inc.에 의해서 제조됨)와의 접촉 저항은  $5.4\text{m}\Omega/\text{cm}^2$ 였다. 또한, 중심층으로서의 흑연 수지 조성물(C1)은  $8500\text{MPa}$ 의 굽힘 탄성률 및  $165^\circ\text{C}$ 의 융점을 갖고, 외층으로서의 흑연 수지 조성물(C3)은  $6200\text{MPa}$ 의 굽힘 탄성률 및  $128^\circ\text{C}$ 의 융점을 가졌다.
- [0223] 또한, 단일 전지 시험을 행하기 위해서, 상기 세퍼레이터와 용착될 수 있는 MEA를 이하와 같이 제조했다.  $50\times 50\text{mm}$ 의 MEA를 금형에 삽입하고, 표 1에 나타낸 절연성 열가소성 수지 조성물(D1)을 사출하여 도 10에 나타낸 절연성 프레임체와 일체화된 MEA를 얻었다. 사용된 MEA에 있어서, 이온 교환막에는 Nafion(등록 상표) 112(Du Pont에 의해서 제조됨)를 사용하고, 백금 촉매(TEC10V50E, Tanaka Kikinzoku K.K.에 의해서 제조됨)를 약  $0.5\text{mg}/\text{cm}^2$ 의 양으로 애노드 및 캐소드에 각각 Pt 접합에 의해서 접합하여  $25\text{cm}^2(50\times 50\text{mm})$  면적의 발전부를 형성했다. 가스 확산 전극으로서 Teflon(등록 상표) 처리된 카본 페이퍼(TGP-H-060, Toray Industries, Ltd.에 의해서 제조됨)를 사용함으로써, 촉매를 고체 폴리머 전해질막(이온 교환막)의 표면 상에 담지시키고(도시하지 않음), 상기 막이 가스 확산층(전극)으로서 작용하는 카본 페이퍼에 끼우고, 그 외주를 절연성의 열가소성 수지 조성물로 피복한 5층 구조를 얻었다.

표 1

	D1	
SEEPS *1	30	(Septon 4055, Kuraray에 의해서 제조됨)
폴리프로필렌	34	(PM801A, SunAllomer에 의해서 제조됨)
프로세스 오일	36	(PW150, Idemitsu Kosan에 의해서 제조됨)



- [0225] \*1 폴리스티렌-폴리(에틸렌-에틸렌/프로필렌) 블록 폴리스티렌
- [0226] 상기 MEA를 실시예 3에서 제조된 세퍼레이터에 의해 사행 유로가 MEA와 접촉하도록 끼우고, 5MPa의 압력 하에서 135℃에서 10초 동안 가열 시일링하여 단일 전지 유닛을 제조했다. 끼워진 조합체를 가열 시일링에 의해서 일체화했기 때문에 가스켓을 사용하지 않아서 부품의 수를 감소시킬 수 있었다.
- [0227] 비교예 3
- [0228] 흑연 수지 조성물(C1)을 폭 60mm 및 두께 3mm의 시트로 형성하고, 흑연 수지 조성물(C3)을 폭 60mm 및 두께 0.1mm의 시트로 형성하고, C3/C1/C3의 구성을 제공하도록 상기 시트를 끼운 후, 상기 시트 조합체를 압연 성형하여 폭 100mm 및 두께 1mm의 3층 시트(구조(층 두께): C3(0.03mm)/C1(0.94mm)/C3(0.03mm))를 얻었다. 이 3층 구조를 갖는 상기 시트를 할로겐 램프에 의해서 240℃로 균일하게 가열하고, 또한 상기 시트를 50-t 프레스 성형기에 배치된 95℃의 금형 셀 사이에 2초 동안 공급하고, 출력 80%의 압력 하에서 3초 동안 스탬핑하여 비교예 1에서의 것과 같은 형상의 세퍼레이터를 얻었다. 얻어진 세퍼레이터에 있어서, 밀도는 1.82g/cm<sup>3</sup>이고, 유로 최박부의 두께는 0.3mm이며, 최대 두께/최소 두께의 비는 4.3이고, 카본 페이퍼(TGP-H-060, Toray Industries, Inc.에 의해서 제조됨)와의 접촉 저항은 7mΩcm<sup>2</sup>였다. 또한, 중심층으로서의 흑연 수지 조성물(C1)은 8500MPa의 굽힘 탄성률 및 165℃의 용점을 갖고, 외층으로서의 흑연 수지 조성물(C3)은 6200MPa의 굽힘 탄성률 및 128℃의 용점을 가졌다.
- [0229] 이어서, 절연성의 열가소성 수지 조성물인 외주를 갖는 실시예 3에서 제조된 5층 구조 MEA를 사행 유로가 상기 MEA와 접촉하도록 상기 제조된 2매의 세퍼레이터에 끼우고, 상기 끼워진 조합체의 가열 시일링을 5MPa의 압력 하에서 135℃에서 30초 동안 시도했지만, 실시예 3에서 보다 긴 시간 동안 가열 시일링을 했음에도 불구하고 용착 불량 발생했다. 또한, 가열 시일링을 5MPa의 압력 하에서 150℃에서 30초 동안 시도했고, 그 결과 단일 전지 유닛을 얻을 수 있었지만, 세퍼레이터의 유로부가 약간 변형되었다.
- [0230] (단일 전지의 평가)
- [0231] 단일 전지의 평가를 실시예 1과 실시예 2, 비교예 1과 비교예 2에서 얻어진 세퍼레이터, 및 실시예 3과 비교예 3에서 얻어진 단일 전지 유닛을 사용하여 행했다. 평가에 있어서, Nafion(등록 상표) 112(Du Pont에 의해서 제조됨)를 이온 교환막으로 사용하고, 백금 촉매(TEC10V50E, Tanaka Kikinzoku K.K.에 의해서 제조됨)를 약 0.5mg/cm<sup>2</sup>의 양으로 애노드 및 캐소드에 각각 Pt 접합에 의해서 접합시켜 25cm<sup>2</sup>(50×50mm) 면적의 발전부가 형성된 MEA를 사용했다. 가스 확산 전극에는 Teflon(등록 상표) 처리된 카본 페이퍼(TGP-H-060, Toray Industries, Inc.에 의해서 제조됨)를 사용했다.
- [0232] 발전 시험을 전지 온도 80℃, 애노드 이슬점 80℃, 캐소드 이슬점 70℃, 수소 유속 500ml/분, 공기 유속 2080ml/분의 일정하고 출구측 대기가 개방된 조건 하에서 행했다. 전지의 온도는 고무 가열기를 부착함으로써 제어했다.
- [0233] 도 11은 출력 시험 결과를 나타낸다. 실시예 1과 실시예 2 및 비교예 1과 비교예 2에 관해서, 단위 체적 및 단위 질량은 각각 세퍼레이터(2매), MEA(1매), 가스켓(2매) 및 탄소 페이퍼(2매)를 포함하는 단일 전지의 체적 및 질량으로부터 산출했다. 실시예 3과 비교예 3에 관해서, 단위 체적 및 단위 질량은 제조된 단일 전지 유닛의 체적 및 질량으로부터 산출했다. 따라서, 도 11에 나타난 결과는 단일 전지를 양측으로부터 끼운 금속판 또는 집전판의 체적 및 질량을 제외하여 비교한 결과이다.
- [0234] 도 11로부터 알 수 있듯이, 탄소 재료로 형성된 판형 세퍼레이터를 사용하는 경우, 세퍼레이터의 두께를 감소시킬 수 있어 얇은 적층을 제조할 수 있으며 중량을 보다 감소시킬 수 있어, 최대 출력 밀도를 크게 향상시킬 수 있었다. 특히, 소량의 VGCF를 첨가함으로써 출력 밀도를 더욱 향상시킬 수 있었다.
- [0235] 또한, 실시예 3에서와 같이, 판형 세퍼레이터를 사용하고 용착에 의해서 단일 전지를 제조하는 경우, MEA와의 접촉 저항을 감소시킬 수 있고, 가스켓을 사용하지 않음으로써 출력 밀도를 더욱 향상시킬 수 있고, 또한 유닛화된 전지를 사용함으로써 제조 시간을 비교예 1의 시간의 1/5로 단축시킬 수 있다.
- [0236] 발전 시험 후, 단일 전지 또는 단일 전지 유닛을 분해하여 세퍼레이터의 유로를 관찰한 결과, 실시예 1~실시예 3에 비해서 비교예 1~비교예 3에서 많은 물방울이 잔존하는 경향이 있었다.

### 도면의 간단한 설명

- [0073] 도 1은 파형 도전성 유로부를 갖는 본 발명의 연료 전지용 세퍼레이터의 일례를 나타내는 모식 단면도이다.
- [0074] 도 2는 본 발명의 파형 도전성 유로부의 일례를 나타내는 부분 단면도이다.
- [0075] 도 3은 본 발명에서 사용된 접촉 저항 측정 방법을 설명하기 위한 모식도이다.
- [0076] 도 4는 본 발명의 세퍼레이터를 사용하는 적층 구성의 일례는 나타내는 단면도이다.
- [0077] 도 5는 도 4에서 사용된 MEA의 일례를 나타내는 부분 확대도이다.
- [0078] 도 6은 본 발명의 실시예에서 얻어진 연료 전지용 세퍼레이터를 나타내는 모식 단면도이다.
- [0079] 도 7은 본 발명의 실시예에서 얻어진 연료 전지용 세퍼레이터의 사행 유로를 나타내는 전체도이다.
- [0080] 도 8은 본 발명의 비교예에서 얻어진 연료 전지용 세퍼레이터를 나타내는 모식 단면도이다.
- [0081] 도 9는 본 발명의 비교예에서 얻어진 연료 전지용 세퍼레이터의 사행 유로를 나타내는 전체도이다.
- [0082] 도 10은 본 발명에서 사용된 MEA를 나타내는 모식도이다.
- [0083] 도 11은 본 발명의 실시예 및 비교예 3에서 얻어진 단일 전지 유닛을 사용한 단일 전지의 출력 시험 결과를 나타내는 도면이다.
- [0084] 도 12는 종래의 유로가 표리 대칭으로 제공된 연료 전지용 세퍼레이터를 나타내는 모식 단면도이다.
- [0085] 도 13은 본 발명에 적합한 파형 형상의 일례를 나타내는 모식 단면도이다.
- [0086] 도면에 있어서, 1은 연료 전지용 세퍼레이터이고, 2는 유로(반응 가스용)이며, 3은 블록부이고, 4는 오폭부이며, 5는 표리 유로의 블록부의 오프셋이고, 6은 카본 페이퍼이며, 7은 지지판(금 도금 황동판)이고, 8은 MEA이며, 9는 프레임체부이고, 10은 MEA체이며, 11은 시험편(세퍼레이터)이고, 12는 MEA(고체 폴리머막+촉매+카본 페이퍼)이며, 13은 절연성 프레임체이고, 14는 5층 구조 MEA이다.

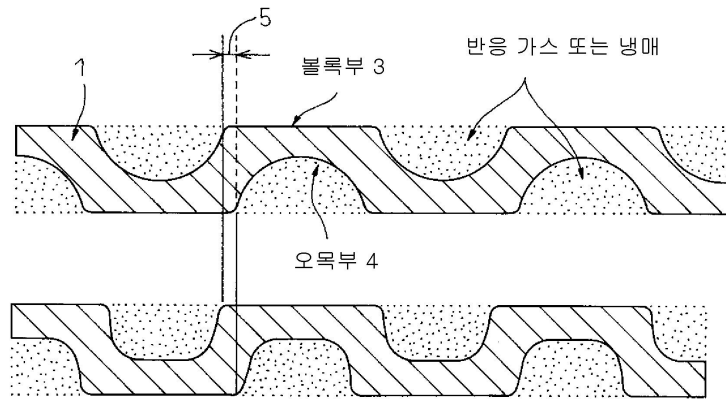
도면

도면1

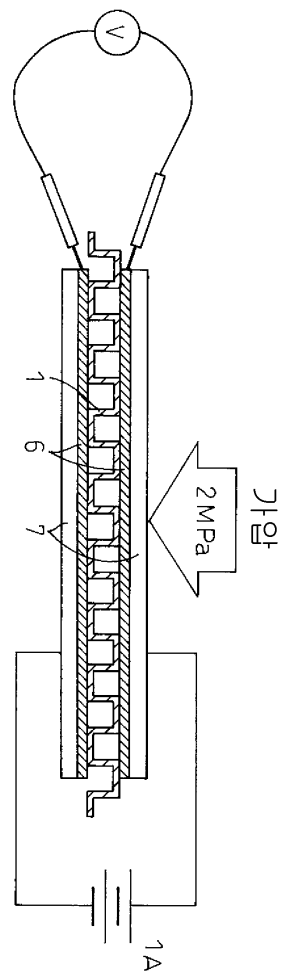




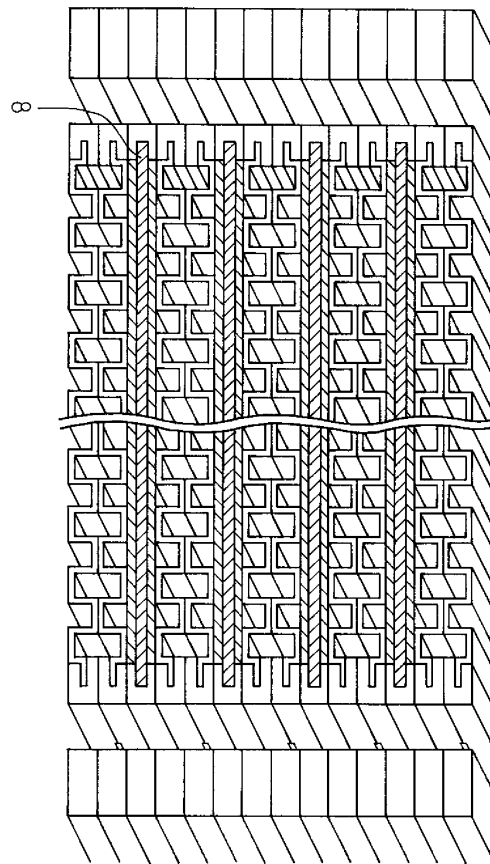
도면2



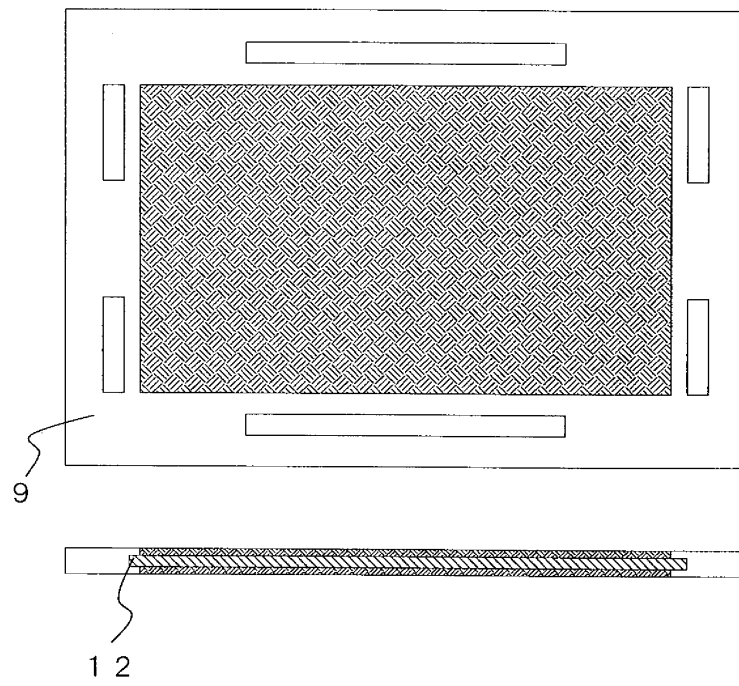
도면3



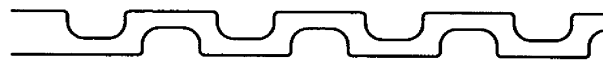
도면4



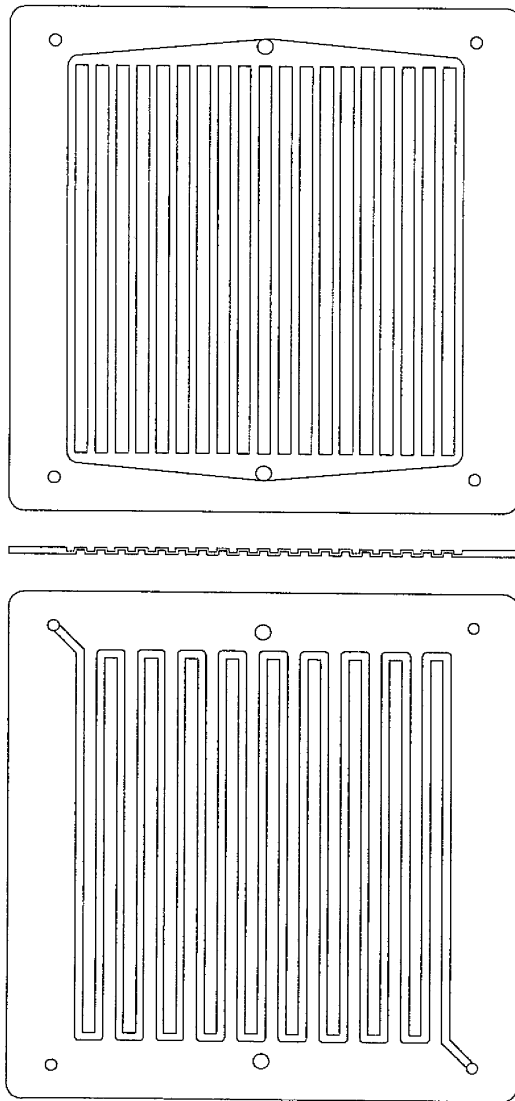
도면5



도면6



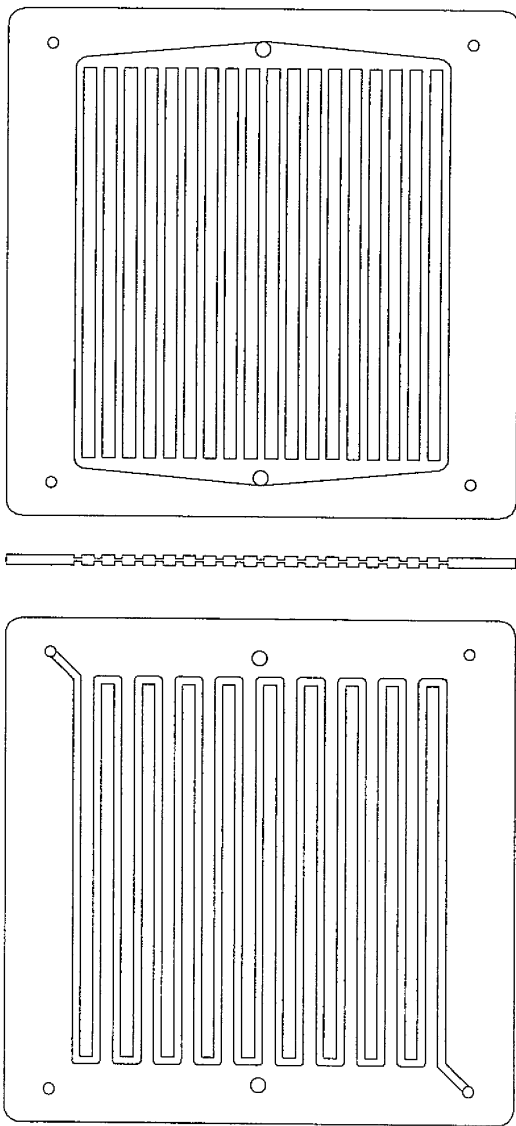
도면7



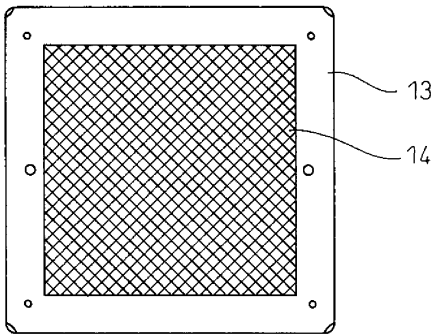
도면8



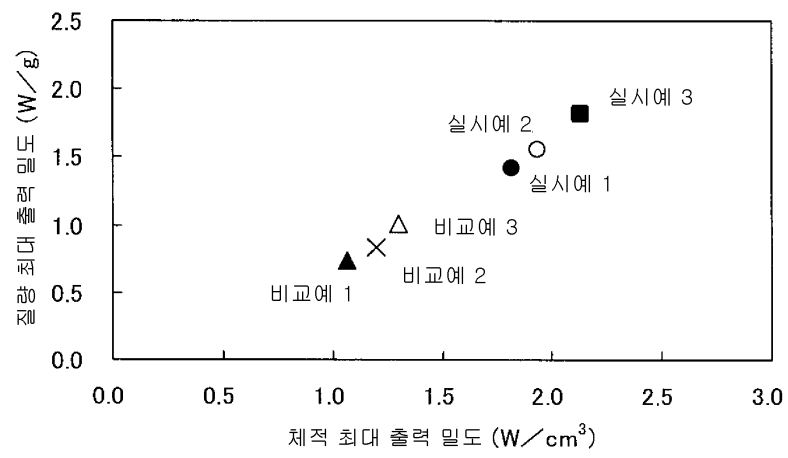
도면9



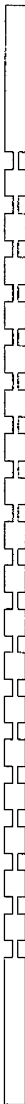
도면10



도면11



도면12





도면13

