

(19)대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(51) Int. Cl.⁷

H01C 1/00
B29B 9/12
H01M 8/02
B29C 47/00

(11) 공개번호 10-2005-0085028
(43) 공개일자 2005년08월29일

(21) 출원번호 10-2005-7008877

(22) 출원일자 2005년05월18일

번역문 제출일자 2005년05월18일

(86) 국제출원번호 PCT/US2003/029591

(87) 국제공개번호 WO 2004/045820

국제출원일자 2003년09월19일

국제공개일자 2004년06월03일

(30) 우선권주장 10/299,144 2002년11월19일 미국(US)

(71) 출원인 쓰리엠 이노베이티브 프로퍼티즈 컴파니
미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 피.오.박스 33427 쓰리엠 센터

(72) 발명자 위다그도 소에멘트리
미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 피.오. 박스 33427
드리스콜 폴 디.
미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 피.오. 박스 33427
벤츠 브리짓 에이.
미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 피.오. 박스 33427
분 메리 알.
미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 피.오. 박스 33427

(74) 대리인 주성민
김영

심사청구 : 없음

(54) 수지와 충전재를 함유하는 고충전 복합재

요약

고충전 복합재는 자동입상화 압출물이 압출기의 배럴로부터 배출하도록 열가소성 수지와 충분한 충전재를 다중 나사 압출기를 통해서 압출함으로써 형성된다. 압출기는 다지관, 스트랜드 다이 및 차단판 없이 작동된다. 압출물은 불규칙한 형상의 입상을 형성한다. 입상은 압축, 사출 또는 압축-사출성형에 의해 연료전지의 분리판 및 단부판과 같은 고충전 성형 제품을 형성하기 위해 사용될 수 있는 성형 복합재를 제공한다.

대표도

도 3

색인어

고충전 복합재, 자동입상화 압출물, 열가소성 수지, 충전재, 연료전지

명세서

기술분야

본 발명은 고충전 복합재 및 이의 제조 방법에 관한 것이다.

배경기술

연료 전지는 통상적으로 열가소성 수지와 전도성 충전재를 함유하는 고충전 복합재로 제조된 단부판과 분리판을 이용하여 구성된다. 이런 복합재를 기술하는 참고문헌은 미국 특허 제5,798,188호, 제6,083,641호, 제6,180,275호, 제6,251,978호, 및 제6,261,495호; 미국 출원 공개 특허 공보 제2002/0039675호; 유럽 출원 공개 특허 공보 제1 059 348 호; 일본 출원 공개 특허 공보 제8-1663호, 제2000-200142호, 제2000-348739호, 및 2001-122677호; 대만 출원 공개 특허 공보 제434930호, 그리고 PCT 출원 공개 특허 공보 제97/50138호, 제97/50139호, 제00/30202호, 제00/30203호, 제00/44005호, 및 제01/89013호를 포함한다.

발명의 상세한 설명

많은 연구원은 연료 전지 분리판과 다른 전도성 구성 요소의 사출 성형 및 압축 성형을 위해 사용될 수 있는 성형 복합재를 조사하여 왔다. 예를 들면, 전술된 참고문헌 중 일부 문헌에 따르면, 고충전 복합재의 펠릿은, 열가소성 수지와 전도성 충전재를 합성하고, 펠레타이저를 이용하여 압출기로부터의 압출물을 펠릿으로 변환한 다음, 이렇게 형성된 펠릿을 적절한 성형기에 공급함으로써 형성된다. 펠릿은 통상적으로 상당히 규칙적인 형상, 즉 원통형 형상을 가진다. 열가소성 수지와 전도성 충전재를 함유하는 더 낮은 고충전 펠릿, 예를 들면 셀러니즈 에이지(Celanese AG)사의 티코나부(Ticona Division)로부터 상업적으로 가용한 탄소 섬유 강화 액정 폴리머인 VECTRA™ A230도 상업적으로 가용하다. 일본 출원 공개 특허 공보 제8-1663호에는 다이 및 차단판 없이 작동된 압출기를 이용하여 플레이크형 펠릿의 제조를 개시하고 있다. 미국 출원 공개 특허 공보 제2002/0039675호에는 미립자와 혼합될 수 있고 이로부터 양호하게 분리되는 펠릿의 제조를 개시하고 있다.

우리는 특히 유용한 성형 복합재가 배출 다지판(소위 "8-0"어댑터), 다이, 차단판, 또는 펠레타이저 없이 작동된 다중 나사 압출기를 통해서 열가소성 수지와 충전재(예를 들면, 전도성 충전재)를 합성하여 형성될 수 있다는 것을 알았다. 최종 압출물은 "자동입상화"이거나 "자동입상"일 것이며, 좀 더 정확히 말하면 압출물은, 펠릿화, 절단, 미분화, 분쇄화, 또는 펠릿 또는 다른 형상의 입자를 형성하기 위한 세분 기술의 요구됨 없이 불규칙한 형상의 입상으로 배럴로부터 방출될 것이다. 자동입상화 압출물은 펠릿화될 필요가 없고, 양호한 실시예에서 자동입상화 압출물은 쉽게 펠릿화될 수 없을 정도로 충분히 고충전된다. 압출물은 미립자의 분리 및 제거에 의해 분류될 필요가 없고, 양호한 실시예에서는 그렇게 분류되지 않는다. 압출물은 형상화된 제품을 성형하기 위한 열가소성 복합재로서, 압출된 자동입상화된 형태 그 자체로 이용될 수 있다. 따라서, 본 발명의 일 태양에 따르면, 본 발명은 자동입상화 압출물이 압출기의 배럴로부터 배출하도록 a) 열가소성 수지와 b) 충분한 충전재를 다중 나사 압출기를 통해서 압출하는 단계를 포함하는 열가소성 수지 복합재를 형성하기 위한 공정을 제공한다.

다른 태양에 따르면, 본 발명은 열가소성 수지와 충전재를 함유하는 불규칙한 형상의 입상 합성물을 포함하는 자동입상화 열가소성 복합재를 제공한다.

양호한 실시예에서, 열가소성 복합재 입상은 압축 성형, 사출 성형 또는 압축-사출 성형에 의해 고충전 제품을 위한 성형 복합재로서 사용될 수 있다.

도면의 간단한 설명

도1은 통상적인 연료 전지의 분해 사시도이다.

도2는 통상적인 쌍나사 압출기의 배출 단부의 분해 사시도이다.

도3은 본 발명의 방법을 실행하는데 사용되는 변형된 쌍나사 압출기의 사시도이다.

도4는 예2의 전도성 복합재에 대한 입자 크기의 범위를 도시하는 그래프이다.

실시예

본 발명의 방법에 있어, "불규칙한 형상"의 입상은, 대부분의 입상이 펠릿화되어 압출된 열가소성의 물질에서 특징적으로 발견되는 규칙적인 원통 형상을 가지지 않는 입상이다.

도1은 쌍을 이룬 가스 확산 전극(13) 사이에 개재되고, 전류 집전기로서 제공되는 양극성 가스 분리판(14) 사이에 산재되는 일련의 폴리머 전해질 막(12)으로 조립되는 통상적인 연료 전지(10)의 분해 사시도이다. 유체 도관(18)과 장착용 체결구(19)를 구비한 단부판(16)은 막(12)과 분리판(14)을 적층식으로 함께 고정한다. 분리판(14) 및 단부판(16)은 양호하게는 본 발명의 열가소성 복합재 입상으로 성형된다.

도2는 통상적인 쌍나사 압출기(20)의 배출 단부의 분해 사시도이다. 배럴(22)은 두 개의 공동 회전식 전 맞물림 압출기 나사(26)를 내장하는 8자형 보어(24)를 가진다. 배럴(22)의 배출면(28)은, 8-0 어댑터 기부(32)와 8-0 어댑터(34)로 구성된 두 부분의 배출 다지판을 배출면(28)에 고정하는 체결구(도2에 도시 안됨)를 정상적으로 수납하는 구멍(30)을 구비하고 있다. 8-0 어댑터(34) 내의 수렴 챔버는 8자형 보어(24)로부터 배출되는 쌍 압출물의 스트림을 출구(36)를 정상적으로 통과하는 단일 압출물의 스트림으로 전환한다. 압출물은 일 이상의 스트랜드 오리피스(40)를 구비한 압출 다이(38)를 정상적으로 통과한 다음, 압출물을 추가 혼합하기 위해 사용될 수 있는 적절한 오리피스 또는 베인(44)을 구비한 차단판(42)을 통과한다. 그 다음, 압출물은 펠레타이저(46)와 같은 적절한 장치에 의해 펠릿화된다.

도3은 본 발명의 방법을 실행하는데 사용되는 변형된 쌍나사 압출기의 측면도이다. 압출기(50)는 8-0 어댑터 기부(32), 8-0 어댑터(34), 다이(38), 그리고 차단판(42)이 제거되고, 도2의 쌍나사(26; 이들 중 하나가 보어(24)에서 은선으로 도시됨)와 배럴(22)을 채용하고 있다. 이들 구성 요소는 압출기의 배압을 증가시키고, 고충전 하중 수준의 달성을 방해할 수 있다. 이들 구성 요소가 제거됨에 따라, 압출되는 동안 고충전량이 부가될 수 있다.

열가소성 수지는 압출기(50)의 투입 단부 주공급구(52)에 부가될 수 있고, 충전재는 압출기(50)의 배럴(22)의 길이방향을 따르는 일 이상의 위치, 가령 공급구(54, 56)에서 부가될 수 있다. 충분한 충전재(예를 들면, 압출물의 총중량을 기초로 하여 약 40중량% 또는 그 이상)가 압출기에 부가되면, 자동입상화 압출물은 압출기(50)로부터 배출되면서 입상(58)을 형성할 수 있고, 방출면(28) 밑에 배치된 호퍼(60)에 수집될 수 있다. 자동입상화 공정은 최소한의 장비와 공정 비용을 가지고 일정한 크기 범위의 고충전 입상을 효율적으로 형성한다. 도2의 펠레타이저(46)도 요구되지 않으며, 입상(58)은 후속 공정 없이 자동입상화된 상태로 사용될 수 있다.

통상적인 펠릿화된 성형 복합재는 통상적으로 매우 규칙적인 형상과 균일한 크기, 예를 들면 펠릿마다 대략 동일한 크기의 원통형 또는 베개형을 가진다. 본 발명의 자동입상화된 압출물은 통상적으로 일정한 범위의 형상과 크기를 가지는 불규칙한 형상인 입상의 혼합물일 것이며, 통상적인 펠릿화된 성형 복합재의 균일한 외형은 없을 것이다. 이런 불규칙한 외형에도 불구하고, 자동입상화된 압출물은, 예를 들면 연료 전지 분리기 및 단부판과 같은 복잡한 형상을 가지는 고충전 전도성 구성 요소를 압축 성형하기 위한 우수한 성형 복합재를 제공할 수 있다.

적절한 압출기는 여러 공급업체로부터 입수 가능하다. 원한다면, 둘 이상의 나사를 구비한 압출기, 예를 들면 세 개 또는 네 개의 나사를 구비한 나사 압출기가 채용될 수 있다. 본 기술분야의 당업자가 아는 바와 같이, 나사의 구조 및 압출기의 작동 조건은 자동입상화된 압출물의 원하는 최종 목적과, 채용된 장비 및 재료에 따라 최적화되거나 조정될 것이다. 대표적인 압출기 및 압출기 나사는 미국 특허 제4,875,847호, 제4,900,156호, 제4,911,558호, 제5,267,788호, 제5,499,870호, 제5,593,227호, 제5,597,235호, 제5,628,560호, 그리고 제5,873,654호에 개시되어 있다.

여러 열가소성 수지가 본 발명에서 채용될 수 있다. 적절한 수지는 폴리페닐렌 설파이드, 폴리페닐렌 옥시드, 액정 폴리머, 폴리아미드, 폴리카보네이트, 폴리에스테르, 폴리비닐리덴플루오라이드, 그리고 폴리에틸렌 또는 폴리프로필렌과 같은 폴리올레핀을 포함한다. 다른 적절한 수지는 전술한 참고문헌 또는 "연료 전지 시스템을 개선하는 티코나사로부터 입수 가능한 고성능 플라스틱(High Performance Plastics From Ticona Improve Fuel Cell Systems)"(셀레니즈 에이지사의 티코나부) 같은 간행물에 개시되어 있다. 대표적인 상업 가용한 폴리페닐렌 설파이드는 FORTRON이란 상표로 셀레니즈 에이지사의 티코나부로부터 가용한 폴리페닐렌 설파이드, RYTON이란 상표로 세브론 필립스 케미컬 컴퍼니 엘피사(Chevron Phillips Chemical Company LP)로부터 가용한 폴리페닐렌 설파이드를 포함한다. 대표적인 상업 가용한 폴리

페닐렌 옥시드는 NORYL의 상표로 지이 플라스틱사(GE Plastics)으로부터 가용한 폴리페닐렌 옥시드를 포함한다. 대표적인 액정 폴리머는 VECTRA의 상표로 셀레니즈 에이지사의 티코나부로부터 가용한 액정 폴리머, XYDAR이란 상표로 아모코 퍼포먼스 프로덕트, 인코포레이티드사(Amoco Performance Products, Inc.)로부터 상용한 액정 폴리머, 그리고 ZENITE이란 상표로 이. 아이. 뒤퐁 데 뉴몰스 앤 컴퍼니사(E.I. duPont de Nemours and Company)로부터 가용한 액정 폴리머를 포함한다. 액정 폴리머는 특히 양호하다. 수지는 순수한(즉, 충전되지 않은) 형태(예를 들면, VECTRA A950 액정 폴리머) 또는 일 이상의 충전재(예를 들면, VECTRA A230 30% 탄소 섬유 강화 액정 폴리머 및 VECTRA A625 25% 그래파이트 충전 액정 폴리머)를 이미 포함하는 형태로 채용될 수 있다. 재생의 입상화된 압출물(원한다면, 이런 압출기로부터 만들어진 리그라운드 성형 및 재생 제품)은 이의 적절한 양이 열가소성 수지에 부가될 수 있다.

여러 충전재가 입자, 플레이크, 섬유 및 이들의 조합을 포함하는 다양한 형태로 본 발명에서 채용될 수 있다. 탄소(예를 들면, 그래파이트, 탄소 블랙, 탄소 나노섬유 및 탄소나노튜브), 금속(예를 들면, 티타늄, 금 및 니오브), 금속 탄화물(예를 들면, 티타늄 탄화물), 금속 질화물(예를 들면, 티타늄 질화물 및 크롬 질화물), 그리고 금속 코팅된 입자, 플레이크, 또는 섬유(예를 들면, 니켈 코팅된 그래파이트 섬유)를 포함하는 전도성 충전재가 특히 양호하다. 그래파이트는 특히 전도성 충전재가 양호하다. 적절한 비전도성 충전재는 실리카, 탄산칼슘, 탄산 마그네슘, 수산화알루미늄, 수산화마그네슘, 알루미늄, 산화아연, 점토, 활석, 유리 분말, 유리 미세기포, 황산 바륨, 플라스틱 비즈(예를 들면, 폴리에스테르 또는 폴리스티렌 비즈), 올레핀계 섬유(예를 들면, 폴리스티렌 섬유 및 폴리프로필렌 섬유), 아라미드 섬유(예를 들면, NOMEX™ 또는 KEVLAR™ 섬유), 암면, 유리 플레이크 및 운모를 포함한다. 충전재는 다양한 크기(예를 들면, 입경, 섬유 길이, 또는 섬유 길이/직경비)와 다양한 표면 영역을 가진다. 예를 들면, 그래파이트 입자가 본 발명에 채용되는 경우에, 그래파이트 입자는 BET 방법을 이용하여 측정된 바와 같이, 약 1 내지 약 100m²/g, 보다 양호하게는 약 1 내지 10m²/g의 표면 영역과, 양호하게는 약 0.1 내지 약 200마이크로미터, 보다 양호하게는 약 0.1 내지 약 25마이크로미터의 입경을 가진다. 탄소 블랙 입자는 양호하게는 약 1마이크로미터보다 작은 입자 크기와 약 500m²/g보다 큰 표면 영역을 가진다. 탄소 나노섬유 및 탄소 나노튜브는 양호하게는 수 나노미터에서 수백 나노미터까지의 직경 범위와 약 50 내지 약 1,500의 가로세로비를 가진다.

자동입상화된 압출물은 초고충전 하중 수준을 함유할 수 있다. 적어도 40중량%의 하중 수준의 충전재가 양호하며, 50 내지 95중량%, 60 내지 95중량%, 70 내지 95중량%, 또는 80 내지 95중량%의 하중 수준의 충전재가 보다 양호하다. 충전재 수준은 압출물의 자동 입상화가 실행되지 않도록 너무 낮으면 안되고, 압출물이 종래의 성형 장비와 자체-지지 단일 제품에서 300℃ 또는 그 이하의 온도를 이용하여 압축 성형될 수 없도록 너무 높으면 안된다. 보다 높은 하중 수준에서, 압출물은 쉽게 펠릿화되지 않으며, 즉, 이의 유동학적 특성은 압출물이 종래의 충전 열가소성 수지 펠릿화 장비를 이용하여 스트랜드 다이를 통과하여 압출될 수 없고 펠릿으로 절단될 수 없도록 하는 것이다. 자동입상화된 압출물은 통상적으로 평균 입경이 약 40 내지 약 4000마이크로미터의 범위에 있는 입상의 혼합물을 포함한다. 혼합물은 유니모달 또는 폴리모달(예를 들면, 바이모달) 입자 크기의 분포를 가질 수 있다. 이는 압출물을 선별하거나 분류할 필요가 일반적으로 없을 것이며, 혼합물로부터 미립자의 제거없이 성형될 수 있다. 선별 단계 없이 압출물을 이용할 수 있다는 것은 특히 압축 성형에 바람직하다. 원한다면, 충전재의 다양한 중량비를 함유하는 자동입상화된 압출물은, 예를 들면, 건조 혼합에 의해 상호 조합될 수 있다.

열가소성 복합재의 입상 염료, 안료, 지시약, 광 안정제, 그리고 난연제 또는 방염제와 같은 다른 보조제를 포함할 수 있다. 이런 보조제는 본 기술분야의 당업자에게 잘 알려져 있다.

열가소성 복합재 입상은 통상적으로 성형되거나 이들이 압출기로부터 방출된 후에 후속 처리될 것이다. 입상은 압축 성형 또는 사출 성형에 특히 적합하다. 적절한 성형 장비 및 조건은 본 기술분야의 당업자에게 잘 알려져 있다. 최종 성형 또는 처리된 제품은 연료전지 분리판 및 단부판, 축전기 전극, 의료기 전극, 전자기 방사선 흡수재, 열적 또는 전기적 전도성 차폐체, 트레이 및 흡열원을 포함하여 광범위한 용도로 사용된다. 본 기술분야의 당업자가 아는 바와 같이, 표면 또는 체적 비저항에 대한 달성하고자 하는 수준에 따라, 최종 처리된 제품은 증실, 증공, 발포 또는 다른 적절한 구조를 가질 수 있다. 전기적 전도성 제품에 있어서, 1984년 블라이스, 에이. 알.(Blythe A. R.)의 "폴리머 재료의 전기 저항도 측정(Electrical Resistivity Measurements of Polymer Materials)", 폴리머 테스트링4, 195-200쪽에 개시된 포-포인트 프로브(four-point probe) 방법을 이용하여 평가된 바와 같이, 체적 비저항값은 0.1ohm-cm 또는 그 이하가 양호하고, 약 0.01ohm-cm 또는 그 이하가 보다 양호하다.

본 발명은 표시되지 않은 단위는모든 부품과 백분율이 중량으로 표시된 이하의 예시적인 실례에서 부연 설명된다.

예1

분말의 폴리페닐렌 설파이드 수지(셀러니즈 에이지(Celanese AG)사의 티코나부(Ticina Division)로부터 상업적으로 가용한 FORTRON™ 203B6)는 (크라우스-마페이 코포레이션사(Krauss-Maffei)의 베르스토프(Berstorff)부로부터 상업적으로 가용하며) 모델명이 ZE40A이고, 8-0 어댑터, 펠레타이징 다이 또는 차단판 없이 작동된 쌍나사 압출기에서 (슈퍼리어 그래파이트 컴퍼니사(Superior Graphite Co.)로부터 상업적으로 가용한) 쌍나사에 의해 70중량%의 제8920호 그래파이트 플레이크와 합성되었다. 압출기 배럴로부터 방출될 때, 압출물은 입상 크기의 범위 내에서 불규칙한 형상의 입상으로 자동적으로 형성되었다. 각각의 입상은 일부 표면이 찰흔과 윤기가 있는, 둥글고 편평한 부분을 가진 주로 편평한 청크였다. 입상의 불규칙한 크기와 외형에도 불구하고, 이들은 펠릿화될 필요가 없으며, 압출된 형태 그 자체가 성형 복합재로서 평가되었다. 입상은 (카버사(Carver)로부터 상업적으로 가용한) 가열 실험실용 프레스를 이용하여 압축 성형되었다. 프레스는 초기에 34.5Mpa 및 300℃로 도입되었다. 300℃에 도달한 후에 압력은 137.9Mpa로 증가되고 입상을 102×102×3.2mm 직각의 평판판으로 형성하기 위해 3분 동안 상기 압력을 유지하였다. 최종 성형 부품은 상당히 적합한 형상의 모서리를 가진 균일하면서 광택이 거의 없는 외형을 지녔다.

비교예1

예1에서 채용된 그래파이트 플레이크와 수지의 혼합물은 압출되지 않고 건조-혼합되었다. 최종 혼합물은 카버사의 실험실용 프레스를 이용하여 적합한 형상의 분리판으로 형성될 수 없었다. 성형 사이클 중간 중간에 여러 혼합물의 추가는 조밀한 성형 부품을 얻기 위해 요구되었다. 하지만, 이런 부품은 주형이 개방되었을 때 박리되었다.

비교예2

예1에서 채용된 그래파이트 플레이크와 수지의 혼합물은 다지판 및 1.5mm 직경의 다이를 구비한 사출 성형기(엥겔 머시너리 인코포레이티드사로부터 상업적으로 가용한 150 Ton 성형기)의 왕복 단일 나사 압출기를 통해 압출되었다. 압출물은 세척작업 또는 에어분사가 진행되는 동안 일반적으로 사용되는 사출 사이클 동안 형성되었다. 압출된 스트랜드는 약 4mm의 길이를 가진 펠릿으로 수동식으로 절단되었다. 최종 펠릿은 20Mpa 및 300℃에서 작동된 (헐 코포레이션사(Hull Corp.)로부터 상업적으로 가용한) 대가열 압축 프레스 또는 카버사의 실험실용 프레스를 이용하여 적합한 형상의 분리판으로 성형될 수 없었다. 성형 부품은 부분적으로 용융된 펠릿 파편의 돌출로 인하여 야기된 "코티지 치즈(cottage cheese)"외형을 가진 불량한 형상의 모서리를 가졌다.

예2

펠릿을 형성하는 액정 폴리머 수지(셀러니즈 에이지사의 티코나부로부터 상업적으로 가용한 VECTRA™ A950)는 예1에서 채용된 쌍나사 압출기의 입구 단부에 부가되었다. (슈퍼리어 그래파이트 컴퍼니사로부터 상업적으로 가용한) 제 2967호 그래파이트 플레이크는 압출물에 70중량% 그래파이트 하중 수준을 제공하기 위해 압출기의 주공급 포트에 부가되었다. 압출기 배럴로부터 방출되면, 압출물은 입상 크기의 범위 내에서 불규칙한 형상의 입상으로 자동으로 형성되었다. 각각의 입상은 일부 표면이 찰흔과 윤기가 있는, 둥글고 편평한 부분을 구비한 주로 편평한 청크였다. 입상은 4 내지 400 메쉬 크기의 더블유. 에스. 테일러 시브 트레이스(W. S. Tyler Sieve Trays)를 이용하여 결정된 바와 같이 약 586마이크로미터의 평균 직경을 가졌다. 도4에 추가 도시된 바와 같이, 입상은 약 45마이크로미터에서 2000마이크로미터까지의 크기 범위에 있었고, 대부분의 입상은 약 250 내지 약 2000마이크로미터 사이의 직경을 가졌다. (호리바 인스트루먼트 인코포레이티드사(Horiba Instrument Inc.)로부터 상업적으로 가용한) SA-6201 표면영역 분석기와 단일-포인트 BET 테스트를 이용하여 수행된 표면 영역 측정은 도4에 도시된 각 크기의 단편에 대해 수행되었다. 총평균 표면 영역은 그래파이트 플레이크의 표면영역 50m²/g보다 낮은 0.13m²/g였다. 각 크기의 단편의 밀도는 ASTM 방법 D 782-91을 이용하여 결정된 바와 같이, 1.78g/cc의 평균 밀도를 가지며 1.73 내지 1.80g/cc의 범위에 있었다. 진공상태에서 수행된 경우에 밀도는 1.84g/cc의 평균 밀도를 가지며 1.81 내지 2.09g/cc의 범위에 있었다. 이는 각 단편의 공극률이 현저히 다양할 수 있고, (형성 공정에 따라) 전기적 전도성에 영향을 미칠 수 있다는 것을 의미한다. 벌크 밀도 역시 표면 영역 분석기에 의한 오토 탭 어태치먼트를 이용하여 결정되었다. 600탭 후에, 벌크 밀도는 1.02g/cc였는데, 이는 입상이 진공상태에서 입상의 1.84g/cc의 평균 밀도를 기초로 하여 평균 약 45% 공극률을 가진다는 것을 의미한다.

불규칙한 크기와 외형의 입상에도 불구하고, 입상들은 펠릿화될 필요가 없었으며, 대신 압출된 형태 그 자체로 성형 복합재로서 평가되었다. 입상은 100×100×2.5mm 평판의 직각형 주형에 주입되었다. 입상은 비교예2에서 채용되었던 헐 프레스(Hull Press)를 이용하여 300℃의 온도 및 20MPa의 압력에서 압축 성형되었다. 최종 성형 부품은 균일하면서, 상당히 적합한 형상의 모서리를 구비한 광택이 거의 없는 외형을 지녔다. 전술한 포-포인트 프로브 테스트를 이용하여, 성형 부품의 평균 체적 비저항은 약 0.274ohm-cm로 결정되었다.

예3-4

예1의 방법 및 재료를 이용하여, 80중량% 또는 90중량%를 포함하는 열가소성 복합재 입상이 준비되고, 연료전지의 분리판을 형성하기 위하여 압축 성형되었다. 분리판은 포-포인트 프로브 테스트에 의하여 0.0996 또는 0.02094ohm-cm의 평균 체적 비저항값을 각각 나타내었다. 이들 값은 매우 낮은 비저항을 의미한다.

예5-11 및 비교예3

예1의 방법을 이용하여, 열가소성 복합재 입상은 예1에서 채용된 그래파이트 플레이크와 (아모코 퍼포먼스 프로덕트, 인코포레이티드사로부터 상업적으로 가용한) XYDAR™ 액정 폴리머를 이용하여 준비되었다. 액정 폴리머의 밀도는 1.38g/cm³였고 그래파이트 플레이크 충전재의 밀도는 2.25g/cm³였다. 이하 표1에 예의 번호, 중량 퍼센트 충전재, 중량 퍼센트 수지, 계산된 압출물 밀도, 계산된 체적 퍼센트 충전재, 계산된 체적 퍼센트 수지, 그리고 압출물의 외형 및 성형성을 기재하고 있다.

표1

예 번호	중량% 충전재	중량% 바인더	압출물 밀도 (g/cm ³)	체적% 압출물	체적% 바인더	압출물 외형	성형성
5	40%	60%	1.63	29%	71%	긴 형상의 파편, 대략 4-12mm	우수
6	50%	50%	1.71	38%	62%	편평한 형상의 청크, 대략 1-5mm	우수
7	60%	40%	1.80	48%	52%	편평한 형상의 청크, 대략 1-4mm	우수
8	70%	30%	1.89	59%	41%	편평한 형상의 청크, 대략 <1-4mm	우수
9	80%	20%	2.00	71%	29%	편평한 형상의 청크, 대략 <1-3mm	우수
10	90%	10%	2.12	85%	15%	편평한 형상의 청크, 대략 <1-2mm	우수
11	95%	5%	2.18	92%	8%	분말 << 1mm	양호
비교예 3	100%	0%	2.25	100%	0%	더스트	불량

표1에 도시된 바와 같이, 자동입상화 압출물은 초고충전 하중 수준으로 형성될 수 있고 유용한 제품으로 성형될 수 있다.

본 발명의 다양한 변형예 및 개조예는 본 발명의 범주 및 사상을 벗어나지 않고서도 본 기술분야의 당업자에게 명백할 것이다. 본 발명은 본 명세서에서 설명된 예시적 목적에 제한되지 않는다.

(57) 청구의 범위

청구항 1.

자동입상화 압출물이 압출기의 배럴로부터 배출하도록 열가소성 수지와 충분한 충전재를 다중 나사 압출기를 통해서 압출하는 단계를 포함하는 열가소성 수지 복합재 입상을 형성하기 위한 공정.

청구항 2.

제1항에 있어서, 압출기는 쌍나사 압출기인 공정.

청구항 3.

제1항에 있어서, 압출물은 성형성이 있는 공정.

청구항 4.

제1항에 있어서, 압출물은 쉽게 켈릿화되지 않는 공정.

청구항 5.

제1항에 있어서, 수지는 폴리페닐렌 설파이드, 폴리페닐렌 옥사이드, 액정 폴리머, 폴리아미드, 폴리카보네이트, 폴리에스테르, 폴리비닐화 불소 또는 폴리올레핀을 포함하는 공정.

청구항 6.

제1항에 있어서, 수지는 액정 폴리머를 포함하는 공정.

청구항 7.

제1항에 있어서, 충전재는 전도성 입자를 포함하는 공정.

청구항 8.

제7항에 있어서, 충전재는 탄소, 금속, 금속 탄화물, 금속 질화물, 또는 금속 코팅된 입자, 플레이크 또는 섬유를 포함하는 공정.

청구항 9.

제7항에 있어서, 충전재는 그래파이트를 포함하는 공정.

청구항 10.

제7항에 있어서, 연료 전지의 분리판 또는 단부판을 형성하기 위하여 압출물을 성형하는 단계를 포함하는 공정.

청구항 11.

제10항에 있어서, 연료 전지를 형성하기 위하여 판들 사이에 적어도 하나의 막에 의해 분리된 복수개의 분리판을 조립하는 단계를 포함하는 공정.

청구항 12.

제7항에 있어서, 충전재는 압출물의 약 40 내지 약 95중량%인 공정.

청구항 13.

제7항에 있어서, 충전재는 압출물의 약 60 내지 약 95중량%인 공정.

청구항 14.

제7항에 있어서, 충전재는 압출물의 약 80 내지 약 95중량%인 공정.

청구항 15.

제1항에 있어서, 충전재는 비전도성 입자를 포함하는 공정.

청구항 16.

열가소성 수지와 충전재를 함유하는 불규칙한 형상의 입상 혼합물을 포함하는 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 17.

제16항에 있어서, 복합재는 성형성이 있는 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 18.

제16항에 있어서, 복합재는 쉽게 펠릿화되지 않는 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 19.

제16항에 있어서, 수지는 폴리페닐렌 설파이드, 폴리페닐렌 옥시드, 액정 폴리머, 폴리아미드, 폴리카보네이트, 폴리에스테르, 폴리비닐화 불소 또는 폴리올레핀을 포함하는 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 20.

제16항에 있어서, 수지는 액정 폴리머를 포함하는 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 21.

제16항에 있어서, 복합재는 약 5mm보다 작은 직경을 가지는 편평한 청크를 포함하는 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 22.

제16항에 있어서, 복합재는 약 3mm보다 작은 직경을 가지는 편평한 청크를 포함하는 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 23.

제16항에 있어서, 충전재는 전도성 입자를 포함하는 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 24.

제23항에 있어서, 충전재는 탄소, 금속, 금속 탄화물, 금속 질화물, 또는 금속 코팅된 입자, 플레이크 또는 섬유를 포함하는 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 25.

제23항에 있어서, 충전재는 그래파이트를 포함하는 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 26.

제23항에 있어서, 충전재는 복합재의 약 40 내지 약 95중량%인 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 27.

제23항에 있어서, 충전재는 복합재의 약 60 내지 약 95중량%인 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 28.

제23항에 있어서, 충전재는 복합재의 약 80 내지 약 95중량%인 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 29.

제23항에 있어서, 복합재를 압축 성형하여 형성된 성형 제품은 약 0.1ohm-cm 또는 그 이하의 체적 비저항을 가지는 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 30.

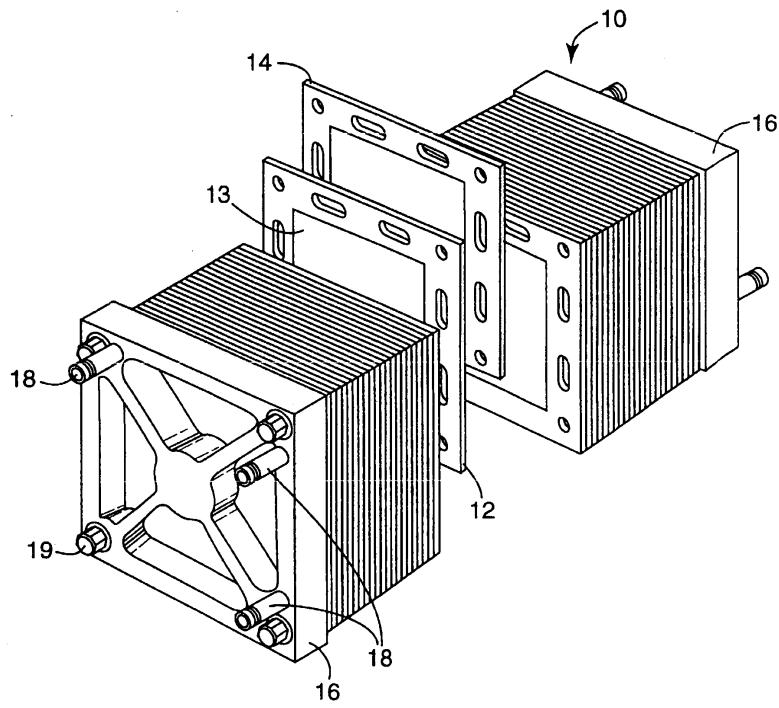
제23항에 있어서, 복합재를 압축 성형하여 형성된 성형 제품은 약 0.01ohm-cm 또는 그 이하의 체적 비저항을 가지는 자동입상화 열가소성 복합재.

청구항 31.

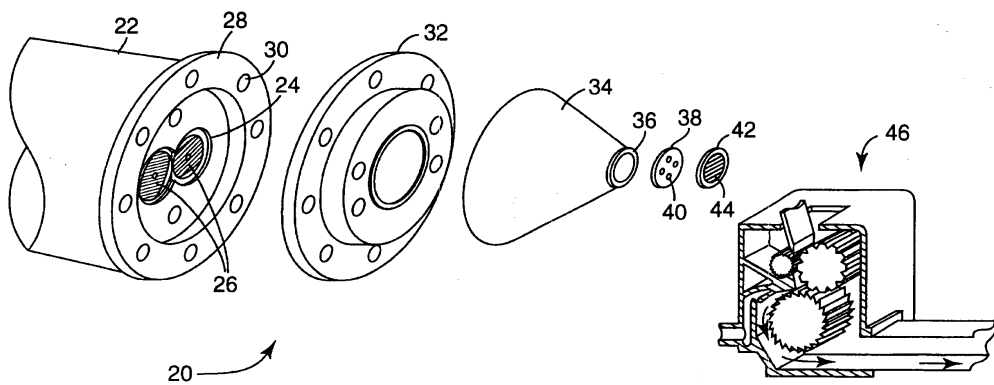
제16항에 있어서, 충전재는 비전도성 입자를 포함하는 자동입상화 열가소성 복합재.

도면

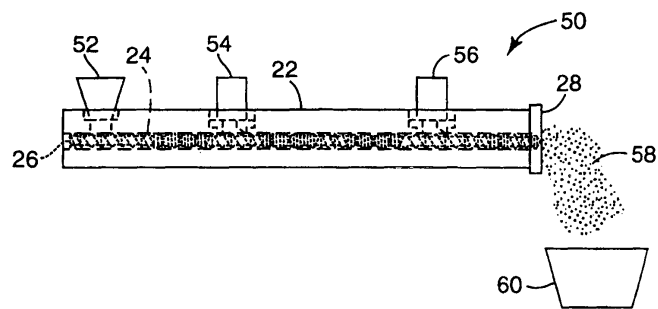
도면1



도면2



도면3



도면4

