



**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 등록특허공보(B1)**

(45) 공고일자 2014년05월27일  
 (11) 등록번호 10-1392227  
 (24) 등록일자 2014년04월29일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
 D04H 1/4382 (2012.01) D04H 1/4242 (2012.01)  
 D04H 1/70 (2006.01) H01M 4/86 (2006.01)  
 (21) 출원번호 10-2013-0030337  
 (22) 출원일자 2013년03월21일  
 심사청구일자 2013년03월21일  
 (56) 선행기술조사문헌  
 KR1020100079353 A  
 JP2002266217 A  
 KR1020050062407 A  
 KR1020100132249 A

(73) 특허권자  
 한국에너지기술연구원  
 대전광역시 유성구 가정로 152(장동)  
 (72) 발명자  
 유윤중  
 대전광역시 서구 둔산로 201번지 국화우성아파트  
 505-407호  
 김현욱  
 대전 서구 만년로 45, 102동 408호 (만년동, 초원  
 아파트)  
 (뒷면에 계속)  
 (74) 대리인  
 특허법인충현

전체 청구항 수 : 총 11 항

심사관 : 이재웅

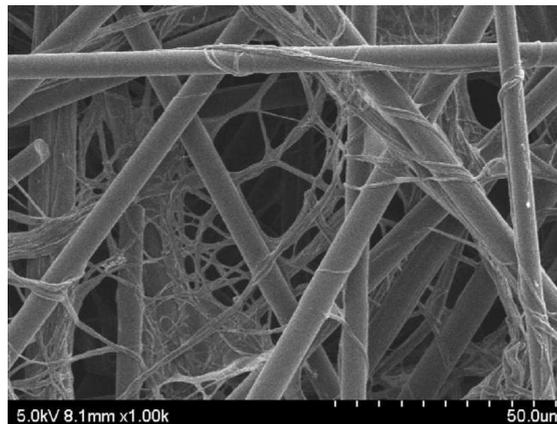
(54) 발명의 명칭 **고분자 나노섬유를 포함하는 탄소섬유 웹**

**(57) 요약**

본 발명은 고분자 나노섬유를 포함하는 탄소섬유 웹에 관한 것으로서, 더욱 구체적으로는, 탄소섬유 분산 구조물; 및 상기 탄소섬유 분산 구조물을 구성하는 탄소섬유들 사이에 분포되어 상기 탄소섬유들을 결합시키는 고분자 나노섬유를 포함하는 탄소섬유 웹에 관한 것이다.

본 발명에 따르면, 대량생산을 위한 연속공정을 수행하기에 충분한 정도의 인장 강도를 보유하면서도, 굴곡 강도, 기체 투과도, 전기적 특성 등이 우수한 탄소섬유 웹을 제공할 수 있으며, 제조된 탄소섬유 웹을 이용하여 기체확산기재 및 기체확산층을 제조함으로써, 우수한 성능의 연료전지용 막전극 접합체 및 상기 막전극 접합체를 포함하는 연료전지를 제공할 수 있다.

**대표도** - 도1



(72) 발명자

**송광섭**

대전 유성구 덕명로 26, 105동 1204호 (덕명동, 운  
암네오미아아파트)

**김홍수**

대전 서구 둔산북로 215, 12동 120호 (둔산동, 가  
람아파트)

**이영주**

경남 창원시 마산합포구 노산서18길 19, 107동  
2101호 (교원동, 무학자이)

**이성진**

대전 유성구 반석로 46, 403동 202호 (반석동, 반  
석마을4단지아파트)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 GP2012-0003-09

부처명 산업기술연구회

연구사업명 임무형 주요사업

연구과제명 탄소섬유를 이용한 PEMFC용 가스확산기재 연속제조기술개발

기여율 1/1

주관기관 한국에너지기술연구원

연구기간 2012.01.01 ~ 2014.12.31

---

**특허청구의 범위**

**청구항 1**

탄소섬유 분산 구조물; 및

상기 탄소섬유 분산 구조물을 구성하는 탄소섬유들 사이에 분포되어 상기 탄소섬유들을 결합시키는 고분자 나노섬유로서, PAN계 고분자 나노섬유, 피치계 고분자 나노섬유 및 레이온계 고분자 나노섬유로 이루어진 군으로부터 선택된 하나 이상의 고분자 나노섬유를 포함하는 탄소섬유 웹.

**청구항 2**

삭제

**청구항 3**

제1항에 있어서, 상기 탄소섬유는 1.0 mm 내지 10.0 mm의 길이 및 3  $\mu\text{m}$  내지 10  $\mu\text{m}$ 의 직경을 갖는 것을 특징으로 하는 탄소섬유 웹.

**청구항 4**

제1항에 있어서, 상기 고분자 나노섬유는 5  $\mu\text{m}$  내지 500  $\mu\text{m}$ 의 길이 및 10 nm 내지 900 nm의 직경을 갖는 것을 특징으로 하는 탄소섬유 웹.

**청구항 5**

제1항에 있어서, 상기 탄소섬유 웹 중 상기 고분자 나노섬유는 상기 탄소섬유 웹 총중량을 기준으로 1 중량% 내지 10 중량%의 함량으로 포함된 것을 특징으로 하는 탄소섬유 웹.

**청구항 6**

제1항에 있어서, 상기 탄소섬유 웹의 두께는 40  $\mu\text{m}$  내지 400  $\mu\text{m}$ 인 것을 특징으로 하는 탄소섬유 웹.

**청구항 7**

탄소섬유, 및 PAN계 고분자 나노섬유, 피치계 고분자 나노섬유 및 레이온계 고분자 나노섬유로 이루어진 군으로부터 선택된 하나 이상의 고분자 나노섬유를 물 중에 혼합분산시켜서 분산액을 제조하는 단계; 및

상기 분산액을 습식 성형장치를 통하여 탈수, 초지 및 건조시키는 단계를 포함하는 탄소섬유 웹의 제조방법.

**청구항 8**

제1항 및 제3항 내지 제6항 중의 어느 한 항에 따른 탄소섬유 웹을 포함하는 연료전지용 기체확산기재.

**청구항 9**

제1항 및 제3항 내지 제6항 중의 어느 한 항에 따른 탄소섬유 웹에 수지 및 전도성 흑연 분말을 함침시키고 경화시키는 단계; 및

상기 경화 결과물 중의 수지 성분을 탄화시키는 단계를 포함하는 기체확산기재의 제조방법.

**청구항 10**

제8항에 따른 연료전지용 기체확산기재; 및

다공성 촉매층을 포함하는 연료전지용 기체확산층.

**청구항 11**

제10항에 따른 연료전지용 기체확산층을 포함하는 연료전지용 막전극 접합체.

**청구항 12**

제11항에 따른 연료전지용 막전극 집합체를 포함하는 연료전지.

**명세서**

**기술분야**

[0001] 본 발명은 고분자 나노섬유를 첨가함으로써 연료전지용 기체확산층에 요구되는 특성이 향상된 탄소섬유 웹에 관한 것이다.

**배경기술**

[0002] 연료전지의 핵심 부품인 막전극집합체 (Membrane electrode assembly, MEA)는 전극촉매, 고분자 전해질 막 및 가스확산층 (Gas Diffusion Layer, GDL)이 일체화되어 있는 부품으로서, 연료전지의 성능은 이들 막전극집합체를 구성하는 요소들의 성능에 의하여 결정된다. 그 중에서도, 가스확산층은 촉매의 지지체, 전극촉매에서 생성된 전기의 전도, 반응가스의 균일한 분산공급, 반응생성물인 물의 배출 등과 같은 기능들을 동시에 수행하는 매우 중요한 소재이다.

[0003] 통상적으로, 가스확산층은 두께 약 200 $\mu$ m 정도의 탄소섬유 웹을 사용하여 수지 및 전도성 흑연분말을 함침시키고, 경화 및 탄화과정을 통해 가스확산기재 (Gas Diffusion Media, GDM)를 제조한 다음, 이러한 가스확산기재에 발수코팅 및 촉매가 담지된 탄소분말로 이루어진 메조포로스층 (Mesoporous Layer, MPL)을 코팅함으로써 완성된다. 즉, 가스확산층은 탄소섬유로 이루어진 가스확산기재와, 여기에 촉매가 담지된 다공성 촉매층 (catalytic layer, CL)으로 구성된다.

[0004] 가스확산층은, 1) 전기저항이 작고, 2) 스택조립압력 (약 10bar)에 따른 두께 감소가 작으며, 3) 인장 및 굴곡강도가 높고, 4) 기체투과도가 높으며, 5) 수분의 젖음성이 낮을수록 유리하며, 따라서 가스확산층의 제조원료인 가스확산기재의 특성과 밀접한 상관성을 갖는다. 즉, 가스확산기재의 특성 향상은 연료전지의 성능 향상에 직결되기 때문에, 가스확산기재의 특성을 향상시키고, 생산비용을 줄이는 것은 연료전지의 기술 및 가격 경쟁력 향상을 위해서 매우 중요한 사항이다.

[0005] 종래 일반적으로 연료전지용 가스확산층으로는 기체투과성과 전자전도성이

[0006] 우수한 발수성 탄소섬유 웹이 사용되어 왔다. 종래의 탄소섬유 웹 제조방법에 있어서, 습식 (wet-laid) 공정에 의해서 탄소섬유 웹을 제조하는 경우에, 먼저 탄소섬유를 수용액 등에 분산시키고, 습식 종이형성장치를 통하여 탈수 및 초지 공정을 거친 다음 건조시켜서 탄소섬유 웹 (web)을 제조하게 된다. 특히, 가스확산기재를 제조하기 위한 탄소섬유 웹은 수지 함침, 경화, 탄화, 및 코팅 등과 같은 여러 단계의 연속공정을 거쳐야 하기 때문에, 인장강도, 굴곡강도 등 물리적 특성향상이 필요하고, 또한 연료전지 스택조립압력에 따른 두께 감소 및 가스확산층의 전기저항을 줄이기 위한 원료물질의 개선도 필요하다. 종래에, 탄소섬유 웹은 탄소섬유 외에 바인더를 첨가하여 제조하였으나, 탄소섬유 간의 결합력이 약하므로 탄소섬유 웹의 인장강도가 충분하지 않다는 단점이 있다.

**발명의 내용**

**해결하려는 과제**

[0007] 따라서, 본 발명에서는 전술한 종래기술의 문제점을 해결하고자, 탄소섬유 웹의 제조 시에 기함성된 탄소섬유가 분산된 분산액에, 탄소섬유 제조 시에 원료물질로 사용되는 고분자 나노섬유를 첨가해 줌으로써, 물리적 특성을 향상시키고, 더불어 탄화 후 전기저항 특성 등과 같은 우수한 물성을 확보할 수 있는 고분자 나노섬유를 포함하는 탄소섬유 웹을 제공하고자 한다.

**과제의 해결 수단**

[0008] 본 발명은 상기 과제를 달성하기 위해서,

[0009] 탄소섬유 분산 구조물; 및 상기 탄소섬유 분산 구조물을 구성하는 탄소섬유들 사이에 분포되어 상기 탄소섬유들을 결합시키는 고분자 나노섬유를 포함하는 탄소섬유 웹을 제공한다.

- [0010] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 상기 고분자 나노섬유는 PAN계 고분자 나노섬유, 피치계 고분자 나노섬유 및 레이온계 고분자 나노섬유로 이루어진 군으로부터 선택된 하나 이상의 고분자 나노섬유일 수 있다.
- [0011] 본 발명의 다른 실시예에 따르면, 상기 탄소섬유는 1.0 mm 내지 10.0 mm의 길이 및 3  $\mu$ m 내지 10  $\mu$ m의 직경을 가질 수 있다.
- [0012] 본 발명의 또 다른 실시예에 따르면, 상기 고분자 나노섬유는 5  $\mu$ m 내지 500  $\mu$ m의 길이 및 10 nm 내지 900 nm의 직경을 가질 수 있다.
- [0013] 본 발명의 또 다른 실시예에 따르면, 상기 탄소섬유 웹 중 상기 고분자 나노섬유는 상기 탄소섬유 웹 총중량을 기준으로 1 중량% 내지 10 중량%의 함량으로 포함될 수 있다.
- [0014] 본 발명의 또 다른 실시예에 따르면, 상기 탄소섬유 웹의 두께는 40  $\mu$ m 내지 400  $\mu$ m일 수 있다.
- [0015] 한편, 본 발명은,
- [0016] 탄소섬유 및 고분자 나노섬유를 물 중에 혼합분산시켜서 분산액을 제조하는 단계; 및
- [0017] 상기 분산액을 습식 성형장치를 통하여 탈수, 초지 및 건조시키는 단계를 포함하는 탄소섬유 웹의 제조방법을 제공한다.
- [0018] 또한, 본 발명은 상기 탄소섬유 웹을 포함하는 연료전지용 기체확산기재를 제공한다.
- [0019] 또한, 본 발명은,
- [0020] 상기 탄소섬유 웹에 수지 및 전도성 흑연 분말을 함침시키고 경화시키는 단계; 및
- [0021] 상기 경화 결과물 중의 수지 성분을 탄화시키는 단계를 포함하는 기체확산기재의 제조방법을 제공한다.
- [0022] 또한, 본 발명은,
- [0023] 상기 연료전지용 기체확산기재; 및
- [0024] 다공성 촉매층을 포함하는 연료전지용 기체확산층을 제공한다.
- [0025] 또한, 본 발명은 상기 연료전지용 기체확산층을 포함하는 연료전지용 막전극 집합체를 제공한다.
- [0026] 또한, 본 발명은 상기 연료전지용 막전극 집합체를 포함하는 연료전지를 제공한다.

**발명의 효과**

- [0027] 본 발명에 따르면, 대량생산을 위한 연속공정을 수행하기에 충분한 정도의 인장 강도를 보유하면서도, 압력에 따른 두께 감소율이 적고, 굴곡 강도, 기체 투과도, 전기적 특성 등이 우수한 탄소섬유 웹을 제공할 수 있으며, 제조된 탄소섬유 웹을 이용하여 기체확산기재 및 기체확산층을 제조함으로써, 우수한 성능의 연료전지용 막전극 집합체 및 상기 막전극 집합체를 포함하는 연료전지를 제공할 수 있다.

**도면의 간단한 설명**

- [0028] 도 1 및 도 2는 각각 실시예 1 및 비교예 1에 따라서 제조된 탄소섬유 웹의 표면을 도시한 사진들이다.
- 도 3 및 도 4는 각각 실시예 2 및 비교예 2에 따라서 제조된 기체확산기재의 표면을 도시한 사진들이다.
- 도 5는 실시예 1 및 비교예 1에 따라서 제조된 탄소섬유 웹의 인장강도 측정결과를 비교도시한 그래프이다.
- 도 6은 실시예 1 및 비교예 1에 따라서 제조된 탄소섬유 웹의 굴곡강도 측정결과를 비교도시한 그래프이다.
- 도 7은 실시예 2 및 비교예 2에 따라서 제조된 가스확산기재의 굴곡강도 측정결과를 비교도시한 그래프이다.
- 도 8은 실시예 1 및 비교예 1에 따라서 제조된 탄소섬유 웹, 그리고 실시예 2 및 비교예 2에 따라서 제조된 가스확산기재의 스택조립 압력 (10bar)에 따른 두께 변화 측정결과를 비교도시한 그래프이다.
- 도 9 및 도 10은 각각 실시예 2 및 비교예 2에 따라서 제조된 가스확산기재의 스택조립압력에 따른 두께 변화 측정결과를 비교도시한 그래프이다.
- 도 11 및 도 12는 각각 실시예 1 및 비교예 1에 따라서 제조된 탄소섬유 웹을 질소 분위기 1200 $^{\circ}$ C에서 탄화시킨

후 스택조립 압력 (10bar)에 따른 전기저항 변화 측정결과를 도시한 그래프이다.

도 13 및 도 14는 각각 실시예 2 및 비교예 2에 따라서 제조된 가스확산기재를 질소 분위기 1200℃에서 탄화시킨 후 스택조립 압력 (10bar)에 따른 전기저항 변화 측정결과를 도시한 그래프이다.

도 15는 실시예 2 및 비교예 2에 따라서 제조된 가스확산기재의 전기저항값을 비교도시한 그래프이다.

도 16은 실시예 2 및 비교예 2에 따라서 제조된 가스확산기재의 기체투과도를 비교도시한 그래프이다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

- [0029] 이하, 도면 및 실시예를 참조하여 본 발명을 더욱 구체적으로 설명하기로 한다.
- [0030] 본 발명에서는 대량생산을 위한 연속공정을 수행하기에 충분한 정도의 인장 강도 등과 같은 물리적 특성을 보유하면서도, 압력에 따른 두께 감소율이 적고, 우수한 전기적 특성을 동시에 보유한 탄소섬유 웹을 제조하고자 하였으며, 제조된 탄소섬유 웹을 이용하여 기체확산기재 및 기체확산층을 제조함으로써, 이를 포함하는 연료전지용 막전극 집합체 및 상기 막전극 집합체를 포함하는 연료전지를 제공하고자 한다.
- [0031] 본 발명에 따른 탄소섬유 웹은 탄소섬유 분산 구조물; 및 상기 탄소섬유 분산 구조물을 구성하는 탄소섬유들 사이에 분포되어 상기 탄소섬유들을 결합시키는 고분자 나노섬유를 포함한다.
- [0032] 즉, 본 발명에서는 종래 통상적인 탄소섬유 웹의 제조에 있어서, 탄소섬유의 분산물에 상기 탄소섬유를 결합하기 위한 유기물 바인더를 사용하는 것과는 달리, 탄소섬유 분산 구조물에 상기 탄소섬유를 결합하기 위한 고분자 나노섬유를 포함시켰다. 이와 같이 탄소섬유 사이 사이에 고분자 나노섬유를 분포시킬 경우, 고분자 나노섬유가 탄소섬유 간의 결합력을 증가시킴으로써 제조된 탄소섬유 웹의 물리적 특성을 크게 증가시킬 뿐만 아니라, 탄소섬유 웹의 압축력을 증가시켜 연료전지 스택의 조립시 발생하는 가스확산층의 두께 감소 현상도 최소화할 수 있다. 또한, 본 발명에 따른 탄소섬유 웹에 대해서 경화 및 탄화 공정을 수행하여 기체확산기재를 제조할 경우, 탄소섬유 웹에 분포된 고분자 나노섬유가 탄화 과정을 거쳐서 최종적으로 기체확산기재, 나아가 기체확산층에 존재하게 되므로 그 전기저항의 감소에도 효과적으로 작용하게 된다.
- [0033] 본 발명에 있어서, 상기 고분자 나노섬유는 탄소섬유 웹 중 탄소섬유를 제조하는 원료 물질이 사용될 수 있으며, 이에 제한되는 것은 아니지만, 예를 들어 PAN계 고분자 나노섬유, 피치계 고분자 나노섬유 및 레이온계 고분자 나노섬유로 이루어진 군으로부터 선택된 하나 이상의 고분자 나노섬유가 사용될 수 있다.
- [0034] 또한, 본 발명에 따른 탄소섬유 웹을 구성하는 또 다른 구성요소인 탄소섬유는 1.0 mm 내지 10.0 mm의 길이 및 3 μm 내지 10 μm의 직경을 갖는 것일 수 있다. 탄소섬유의 길이가 상기 범위를 벗어나 작을 경우에는 탄소섬유의 단락으로 전기저항이 증가되며, 또한 탄소섬유 웹이 치밀화되어 기체투과도가 낮아진다는 문제점이 있다. 반대로, 탄소섬유의 길이가 상기 범위를 벗어나 긴 경우에는 탄소섬유 웹을 제조할 때 탄소섬유의 분산성이 급격히 저하되어 균일한 탄소섬유 웹을 만들기 어렵기 때문에 바람직하지 않다. 또한, 탄소섬유의 직경이 상기 범위를 벗어나 작을 경우 탄소섬유 웹 제조를 위한 탄소섬유의 분산과정에서 물리적 충격에 의해 탄소섬유의 단섬유화가 빠르게 진행되어 결국 탄소섬유 웹이 치밀해지며, 이와 반대로 탄소섬유의 직경이 상기한 범위보다 클 경우에는 탄소섬유 웹의 두께가 너무 두꺼워져 바람직하지 않다.
- [0035] 한편, 고분자 나노섬유의 길이 및 직경 역시 각각, 5 μm 내지 500 μm 및 10 nm 내지 900 nm인 것이 바람직한데, 고분자 나노섬유의 길이가 5 μm 미만인 경우에는 탄소섬유 웹에 분포된 탄소섬유들을 서로 결합시켜 주기에 충분하지 못한 길이라는 문제점이 있고, 길이가 500 μm를 초과하는 경우에는 고분자 나노섬유의 분산성이 떨어지게 되는 문제점이 있어서 바람직하지 않다. 또한, 고분자 나노섬유의 직경이 10 nm 미만인 경우에는 탄소섬유들을 서로 결합시켜 주는 결합력이 약화되는 문제점이 있고, 직경이 900 nm를 초과하는 경우에는 탄소섬유가 직진성을 갖게 되어 탄소섬유 상호 간의 얽힘 현상이 급격히 저하되는 문제점이 있어서 바람직하지 않다.
- [0036] 또한, 상기 탄소섬유 웹 중 상기 고분자 나노섬유는 상기 탄소섬유 웹 총중량을 기준으로 1 중량% 내지 10 중량%의 함량으로 포함될 수 있는데, 고분자 나노섬유의 함량이 1 중량% 미만인 경우에는 고분자 나노섬유 첨가에 따른 효과, 즉 탄소섬유 간 결합력의 향상을 도모할 수 없다는 문제점이 있고, 고분자 나노섬유의 함량이 10 중량%를 초과하는 경우에는 고분자 나노섬유 및 탄소섬유의 분산성이 크게 저하되고, 또한 탄소섬유 웹의 제조시 치밀화되어 탈수가 원활하지 않게 되는 문제점이 있어서 바람직하지 않다.
- [0037] 본 발명에 따른 탄소섬유 웹은 탄소섬유 사이 사이에 고분자 나노섬유가 분포하여 탄소섬유 간의 결합을 가능하게 하므로, 그 기계적 강도를 향상시킬 뿐만 아니라, 그 압축력을 향상시켜 연료전지 스택 조립시 초래되는 가

스확산층의 두께 감소 현상을 최소화할 수 있다. 구체적으로, 본 발명에 따라서 제조된 탄소섬유 웹은 약 40  $\mu\text{m}$  내지 400  $\mu\text{m}$ 의 두께를 가질 수 있다.

[0038] 한편, 본 발명은 상기 탄소섬유 웹의 제조방법을 제공하며, 본 발명에 따른 제조방법은, 탄소섬유 및 고분자 나노섬유를 물 중에 혼합분산시켜서 분산액을 제조하는 단계; 및 상기 분산액을 습식 성형장치를 통하여 탈수, 초지 및 건조시키는 단계를 포함한다. 즉, 본 발명에 따른 제조방법은 탄소섬유 웹의 습식 제조방법으로서, 먼저 일정량의 물에 탄소섬유 구조체의 구성물질이 되는 탄소섬유 및 고분자 나노섬유를 첨가 및 교반하여 슬러리 형태의 분산액을 제조한 다음, 제조된 슬러리를 탈수 장치에 공급하고 탈수시키는 과정을 수행한다. 탈수 장치로는 와이머머시 등이 장착된 배치 (batch)형 또는 연속형의 일반적인 종이 제조장치가 사용될 수 있으며, 탈수 과정 이후에는 탈수 결과물을 소정 온도를 갖는 건조 롤 등에 통과시켜 건조시킴으로써 본 발명에 따른 탄소섬유 웹을 제조하게 된다.

[0039] 또한, 본 발명은 상기 본 발명에 따른 탄소섬유 웹을 포함하는 연료전지용 기체확산기재 (GDM)를 제공하며, 이러한 기체확산기재는, 상기와 같이 완성된 탄소섬유 웹에 수지 및 전도성 흑연 분말을 함침시키고 경화시킨 다음, 다시 상기 경화 결과물 중의 수지 성분을 탄화시킴으로써 제조될 수 있다.

[0040] 상기와 같이 제조된 기체확산기재는 연료전지에 사용되는 기체확산층을 제조하는데 사용될 수 있는 바, 상기 기체확산기재에 메조포러스 탄소분말 및 촉매를 사용하여 다공성 촉매층을 형성한 다음, 이를 발수 코팅함으로써 연료전지용 기체확산층을 제조할 수 있게 된다. 결과물로 제조된 기체확산층은 고분자막과 접합되어 연료전지의 막전극 접합체 (Membrane Electrode Assembly, MEA)를 구성하게 된다.

[0041] 이하, 실시예를 통하여 본 발명을 더욱 구체적으로 설명하기로 하되, 하기 실시예는 본 발명의 이해를 돕기 위한 것일 뿐, 본 발명의 범위를 제한하는 것은 아니다.

[0042] 탄소섬유 웹의 제조

[0043] 실시예 1. 본 발명에 따른 탄소섬유 웹의 제조

[0044] 비이커에 수돗물 2 리터를 담고 증점제 (카복시메틸셀룰로오즈 CMC, FH1000-고려화학)를 12g 첨가하여 30분 동안 1000 rpm으로 교반시킴으로써 용액을 제조하였다. 제조된 용액의 동점도는 135 cSt를 나타내었다. 상기 용액에, 탄소섬유 (Toray사, T-700, 4.5 mm chopped) 2g, 바인더 (폴리비닐알콜, 2.0 mm chopped) 0.3g 및 PAN계 나노섬유 0.09g (폴리아크릴로니트릴, 자체 제조)을 차례로 첨가한 후 1,500 rpm으로 2시간 이상 교반하여 슬러리를 제조하였다. 다음으로, 통기도 345인 3중직 와이머머시가 하부에 장착된 습식종이성형장치 (시트머신 DM-831, 대일기공)에 제조된 슬러리를 붓고 1분간 유지시킨 후 탈수시킴으로써 탄소섬유 웹을 성형하였다. 성형된 웹을 흡수지를 사용하여 2차 탈수하였고, 탄소섬유 웹을 분리하여 표면온도 90℃인 건조롤에 통과시켜서 본 발명에 따른 탄소섬유 웹을 완성하였다. 완성된 탄소섬유 웹의 두께는 250 $\mu\text{m}$ 이고, 평량은 38.1 g/m<sup>2</sup>를 나타내었다.

[0045] 비교예 1. 종래기술에 따른 탄소섬유 웹의 제조

[0046] PAN계 나노섬유를 첨가하지 않은 점을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법에 의해서 종래기술에 따른 탄소섬유 웹을 제조하였다. 완성된 탄소섬유 웹의 두께는 223 $\mu\text{m}$ 이고, 평량은 32.4 g/m<sup>2</sup>를 나타내었다.

[0047] 하기 표 1에는 상기 실시예 1 및 비교예 1의 성분 조성을 비교하여 나타내었다.

**표 1**

[0048]

	물	탄소섬유	증점제	바인더	PAN계 나노섬유
실시예 1	2,000	2	12	0.3	0.09
비교예 1	2,000	2	12	0.3	-

[0049] (단위: g)

[0050] 실시예 1 및 비교예 1에 따라서 제조된 탄소섬유 웹의 표면사진을 각각 도 1 및 도 2에 비교하여 도시하였다. 도 1 및 도 2의 비교로부터 알 수 있는 바와 같이, 본 발명에 따라서 PAN계 나노섬유를 첨가한 경우, 나노섬유는 탄소섬유 웹 중에서 탄소섬유를 서로 강하게 결합시키는 결합재로서의 역할을 훌륭하게 수행한다.

- [0051] 실시예 2. 본 발명에 따른 기체확산기재의 제조
- [0052] 실시예 1로부터 제조된 탄소섬유 웹을, 전도성 흑연 분말 (MGF-4, 삼정씨엔지) : 페놀 수지 (코오롱, 레졸형 KRD-HM2) : 메탄올의 혼합 중량비가 1 : 1.4 : 8.6인 용액에 5분간 담지한 후, 80℃ 및 150℃에서 경화하였다. 이어서, 질소 분위기에서 승온 속도 5℃/분으로 1,200℃까지 승온 후 2시간 동안 유지하여 탄화하였다. 탄화 후 탄소분말 및 페놀 수지의 담지량은 전체 무게의 47.4%를 나타내었다.
- [0053] 비교예 2. 종래기술에 따른 기체확산기재의 제조
- [0054] 비교예 1로부터 제조된 탄소섬유 웹을 사용하였다는 점을 제외하고는 상기 실시예 2와 동일한 방법에 의해서 종래기술에 따른 기체확산기재를 제조하였다. 탄화 후 탄소분말 및 페놀 수지의 담지량은 전체 무게의 30.6%를 나타내었다.
- [0055] 실시예 2 및 비교예 2에 따라서 제조된 기체확산기재의 표면사진을 각각 도 3 및 도 4에 비교하여 도시하였다. 도 3 및 도 4로부터 알 수 있는 바와 같이, 첨가된 PAN계 나노섬유는 고온의 탄화 과정을 거친 이후에도 탄소섬유 웹 중에 여전히 존재하였으며, 이러한 PAN계 나노섬유에 의해서 탄소섬유 상호간 및 탄소섬유와 흑연분말 사이의 결합이 양호하게 유지됨을 알 수 있다.
- [0056] 실험예 1. 인장강도의 측정
- [0057] PAN계 나노섬유를 첨가하여 제조한 실시예 1의 탄소섬유 웹 및 PAN계 나노섬유를 첨가하지 않은 비교예 1의 탄소섬유 웹에 대한 인장강도 측정결과를 비교하였으며, 그 결과를 도 5에 도시하였다. 인장강도의 측정은 만능시험기 (Tinius Olsen H5KT)를 사용하여 수행하였으며, 종이의 인장강도 측정방법인 T494의 조건으로 측정하였다. 또한, 동일한 방법으로 10회 반복측정하여 최고값 및 최저값을 제외한 다음, 나머지 값들의 평균값을 취하였다. 도 5의 그래프로부터 알 수 있는 바와 같이, 실시예 1에 의하여 제조된 탄소섬유 웹의 경우에는 37.137N/mm의 평균 인장강도를 나타냄에 반하여, 비교예 1에 의하여 제조된 탄소섬유 웹의 평균 인장강도는 9.263N/mm로서, 본 발명에 따른 탄소섬유 웹의 인장강도는 종래기술에 따른 탄소섬유 웹의 인장강도에 비해서 약 400% 증가한 값을 보였다.
- [0058] 실험예 2. 굴곡강도의 측정
- [0059] PAN계 나노섬유를 첨가하여 제조한 실시예 1의 탄소섬유 웹 및 PAN계 나노섬유를 첨가하지 않은 비교예 1의 탄소섬유 웹에 대한 굴곡강도 측정결과를 비교하였으며, 그 결과를 도 6에 도시하였다. 또한, 실시예 2 및 비교예 2에 따라서 제조된 가스확산기재의 굴곡강도를 도 7에 도시하였다. 굴곡강도의 측정은 만능시험기 (Tinius Olsen H5KT)를 사용하여 수행하였으며, ASTM D 790의 조건으로 측정하였다. 또한, 동일한 방법으로 5회 측정하여 평균값을 취하였다. 도 6의 그래프로부터 알 수 있는 바와 같이, 실시예 1에 의하여 제조된 탄소섬유 웹의 평균굴곡강도는 25.45 MPa인 반면에, 비교예 1에 의하여 제조된 탄소섬유 웹의 평균굴곡강도는 13.18 MPa로서, 본 발명에 따른 탄소섬유 웹의 굴곡강도는 종래기술에 따른 탄소섬유 웹의 굴곡강도에 비해서 약 193% 증가한 값을 보였다. 또한, 도 7로부터 알 수 있는 바와 같이, 실시예 2에 의해서 제조된 가스확산기재의 굴곡강도는 24.58 MPa로서, 비교예 2에 의해서 제조된 가스확산기재의 굴곡강도인 8.43 MPa에 비해서 약 290% 향상된 값을 나타내었다. 결과적으로, 도 6 및 도 7의 결과로부터, 본 발명에 따른 탄소섬유 웹 뿐만 아니라, 상기 탄소섬유 웹을 사용하여 제조된 본 발명에 따른 가스확산기재 역시 종래기술에 비해서 월등하게 우수한 굴곡강도 특성을 나타낸다는 사실을 알 수 있다.
- [0060] 실험예 3. 두께 감소율의 측정
- [0061] 연료전지 스택 조립 압력에 따른 가스확산층의 두께 감소는 막전극 접합체의 변형을 초래하여 발수 코팅층의 손상, 가스확산의 불균일 및 전기저항을 증가시키는 요인이 될 수 있다. 특히, 고용량 연료전지를 위한 대면적화에 있어서, 다수의 막전극 접합체를 겹쳐서 조립할 때 가스확산층의 두께 감소가 작을수록 상기 문제점을 방지할 수 있다. 따라서, 가스확산층의 출발 소재인 탄소섬유 웹의 두께 감소율이 적을수록 최종적으로는 우수한 연료전지를 제조할 수 있다.
- [0062] 도 8은 실시예 1 및 비교예 1에 따라서 제조된 탄소섬유 웹, 그리고 실시예 2 및 비교예 2에 따라서 제조된 가스확산기재의 스택조립 압력 (10bar)에 따른 두께 변화를 측정하여 도시한 그래프이다. 도 8로부터 알 수 있는 바와 같이, 실시예 1의 경우 62.8%, 비교예 1의 경우 65.5%의 두께 감소율을 나타내었으며, 또한 실시예 2의 경우 29.6%, 비교예 2의 경우 40.2%의 두께 감소율을 나타내었다. 특히, 특히 탄소섬유 웹에 전도성 흑연분말 및 페놀 수지를 담지하여 경화 및 탄화시킨 실시예 2 및 비교예 2에 따른 가스확산기재 (GDM)의 두께 변화는 결국

가스확산층 (GDL) 및 막전극접합체 (MEA)에 영향을 미치는 매우 중요한 데이터라 할 수 있다. 따라서, 도 9 및 도 10에는 각각 실시예 2 및 비교예 2에 따른 가스확산기재의 스택조립압력에 따른 두께 변화 그래프를 도시하였다. 도 9 및 10을 참조하면, 본 발명에 따른 가스확산기재는 동일한 스택조립압력 하에서 종래기술에 따른 가스확산기재에 비해서 두께 감소 정도가 월등하게 작으며, 따라서 본 발명에 따른 고분자 나노섬유의 첨가는 가스확산층의 스택조립압력에 따른 두께감소를 줄이는데 매우 효과적임을 알 수 있다.

[0063] 실험예 4. 전기저항의 측정

[0064] 실시예 1 및 비교예 1의 탄소섬유 웹을 질소 분위기 1200℃에서 탄화시킨 후 스택조립 압력 (10bar)에 따른 전기저항의 변화를 측정하였으며, 그 결과를 각각 도 11 및 도 12에 도시하였다. 더불어, 실시예 2 및 비교예 2의 가스확산기재의 스택조립 압력에 따른 전기저항의 변화를 측정하였으며, 그 결과를 각각 도 13 및 도 14에 도시하였다.

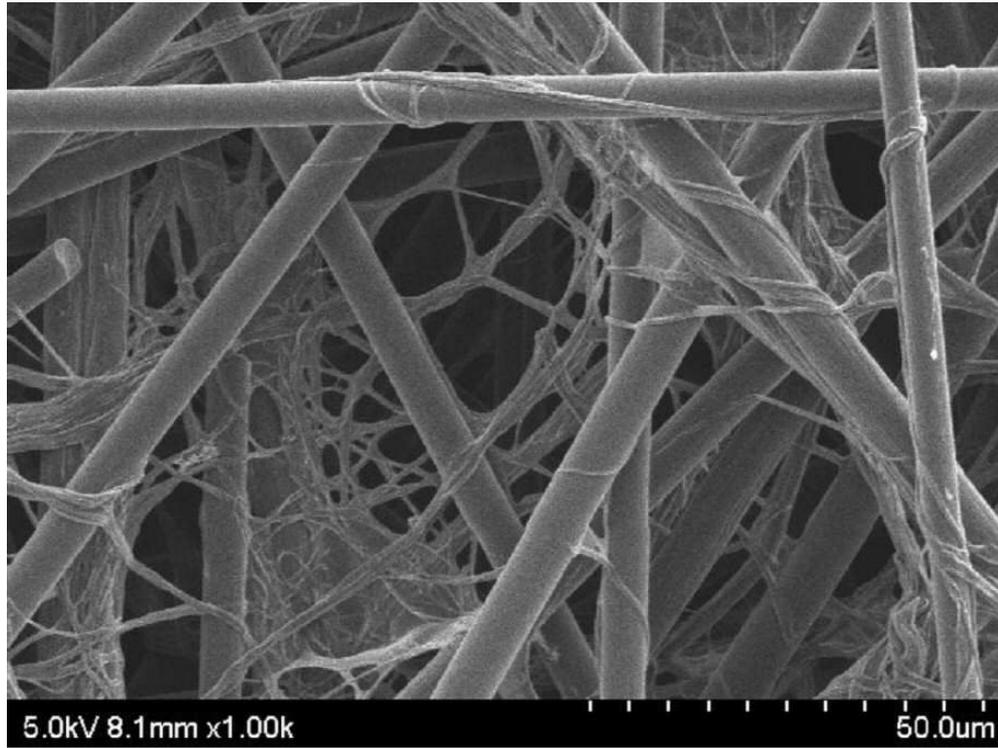
[0065] 도 11 및 12로부터 알 수 있는 바와 같이, 실시예 1의 탄소섬유 웹 및 비교예 1의 탄소섬유 웹에 대한 전기저항은 각각  $11.85 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$  및  $13.3 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ 로서, 탄소섬유 웹 자체의 탄화 후 전기저항은 고분자 나노섬유를 첨가하여 웹을 제조한 실시예 1의 경우에 훨씬 작은 값을 나타내었다. 또한, 도 13 및 14로부터 알 수 있는 바와 같이, 실시예 2의 가스확산기재 및 비교예 2의 가스확산기재에 대한 전기저항은 각각  $2.25 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$  및  $2.16 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ 였다. 도 15에는 실시예 2 및 비교예 2의 전기저항값을 비교한 그래프를 도시하였는데, 각각의 수치는 측정 오차범위 내에서 거의 동일한 값을 나타내었는 바, 이는 탄소섬유 웹에 전도성 흑연분말 및 수지를 함침 후 탄화하였기 때문에 실시예 1 및 비교예 1처럼 탄소섬유 웹 자체를 탄화시킨 경우보다 전기저항이 크게 줄어들었기 때문으로 판단된다.

[0066] 실험예 5. 기체 투과도

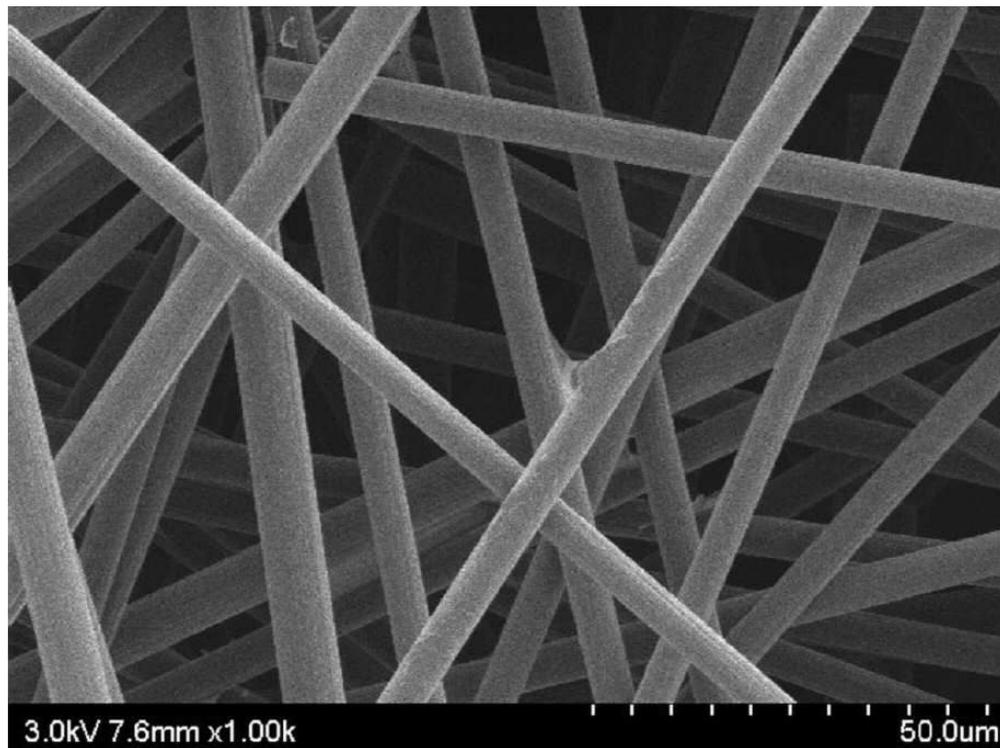
[0067] 실시예 2 및 비교예 2에 따라서 제조된 가스확산기재의 기체 투과도를 측정하였으며 (Air permeability tester, A-10, Borgwaldt kc, head  $1 \times 1 \text{ cm}^2$ , 1kpa), 도 16에는 측정된 결과를 그래프로 도시하였다. 도 16으로부터 알 수 있는 바와 같이, 실시예 2 및 비교예 2의 가스확산기재는 거의 유사한 기체 투과도 값을 나타내었으며, 따라서 본 발명에 따라서 고분자 나노섬유를 첨가해 주더라도 기체 투과도가 저하되는 현상은 발생하지 않는 바, 본 발명에 따른 가스확산기재는 연료전지의 기체확산층에 채용되기에 충분한 기체 투과성을 나타냄을 알 수 있다.

도면

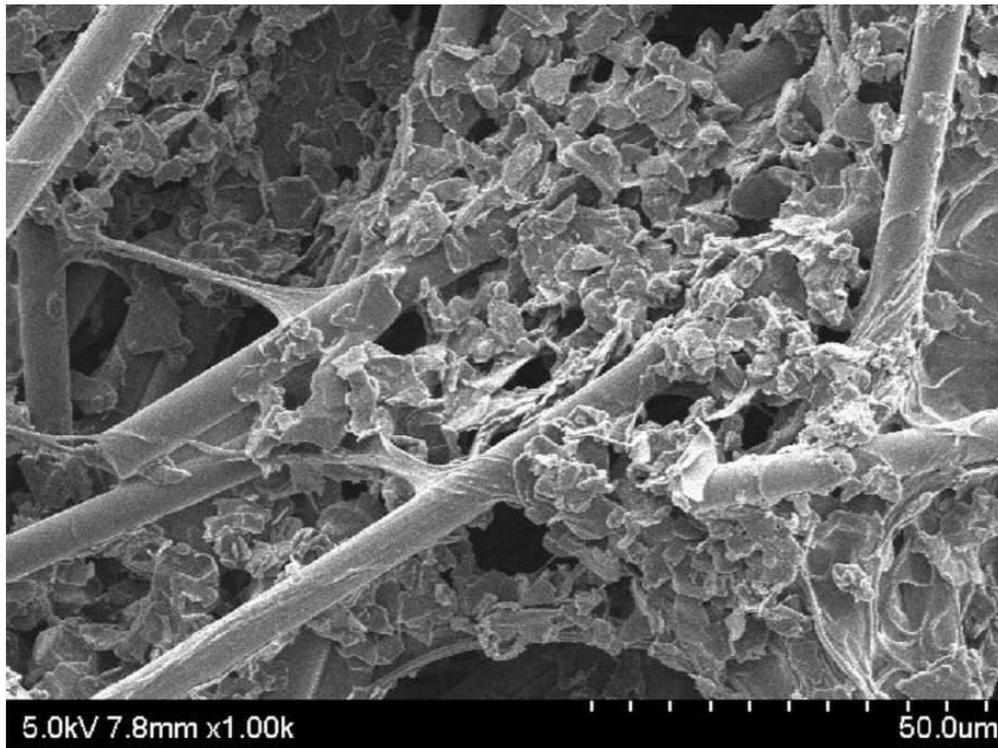
도면1



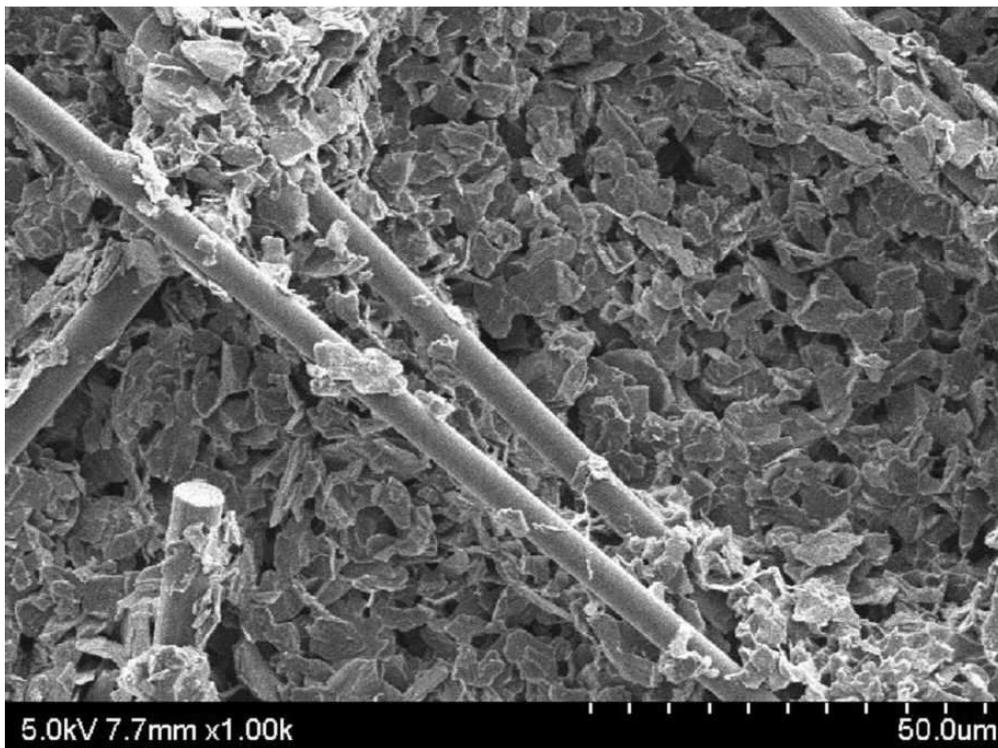
도면2



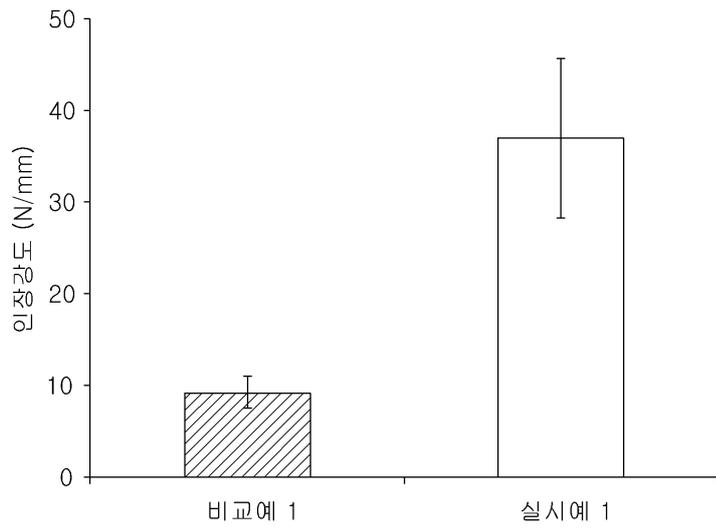
도면3



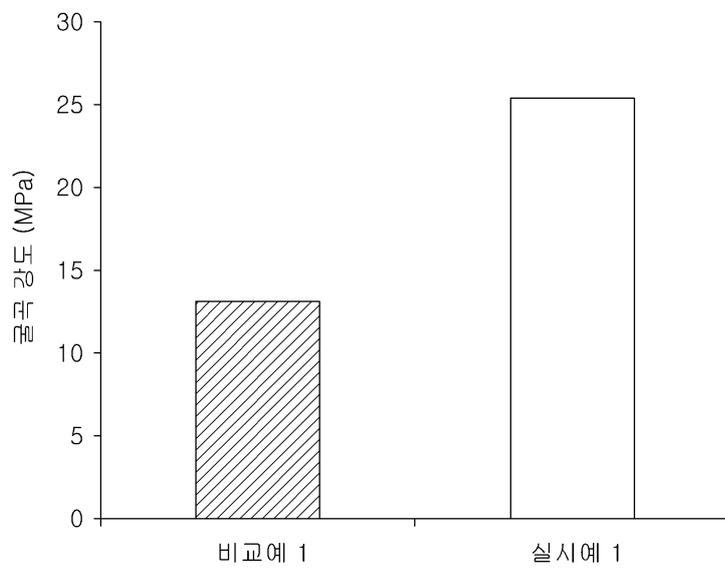
도면4



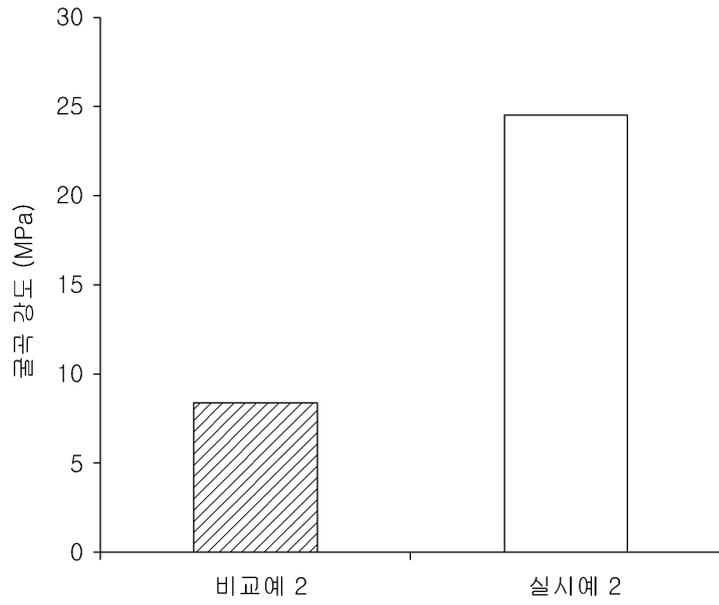
도면5



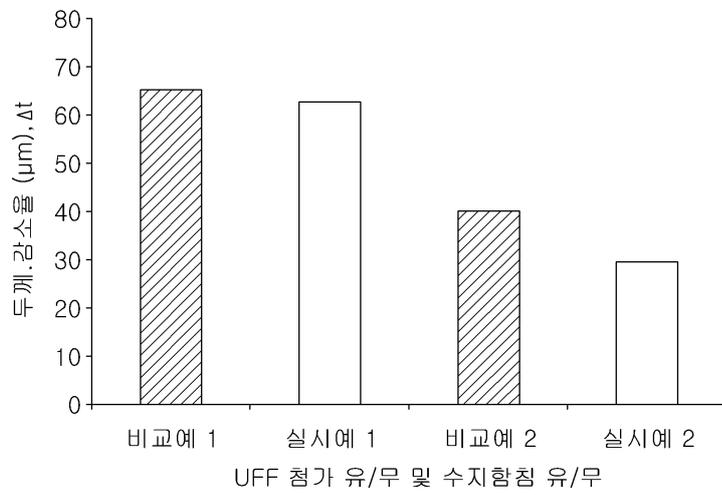
도면6



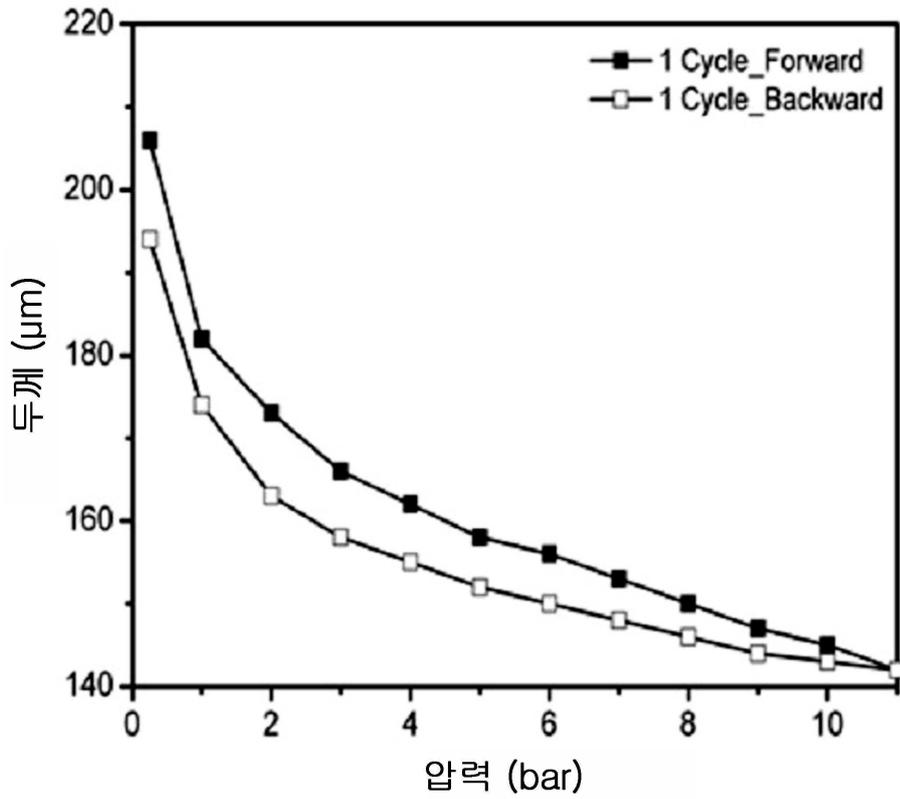
도면7



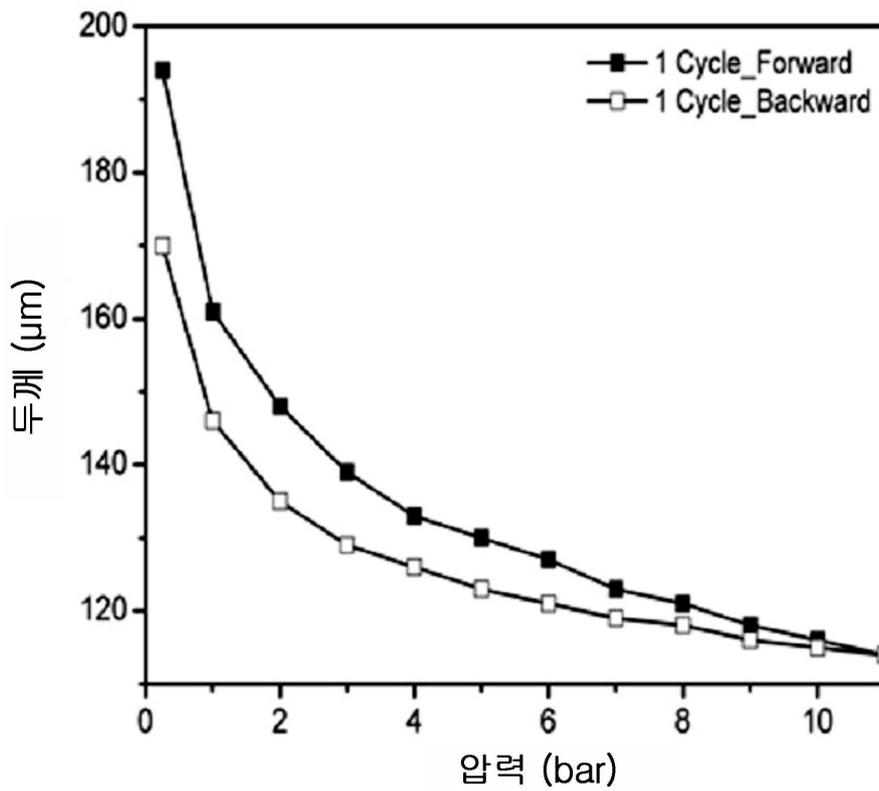
도면8



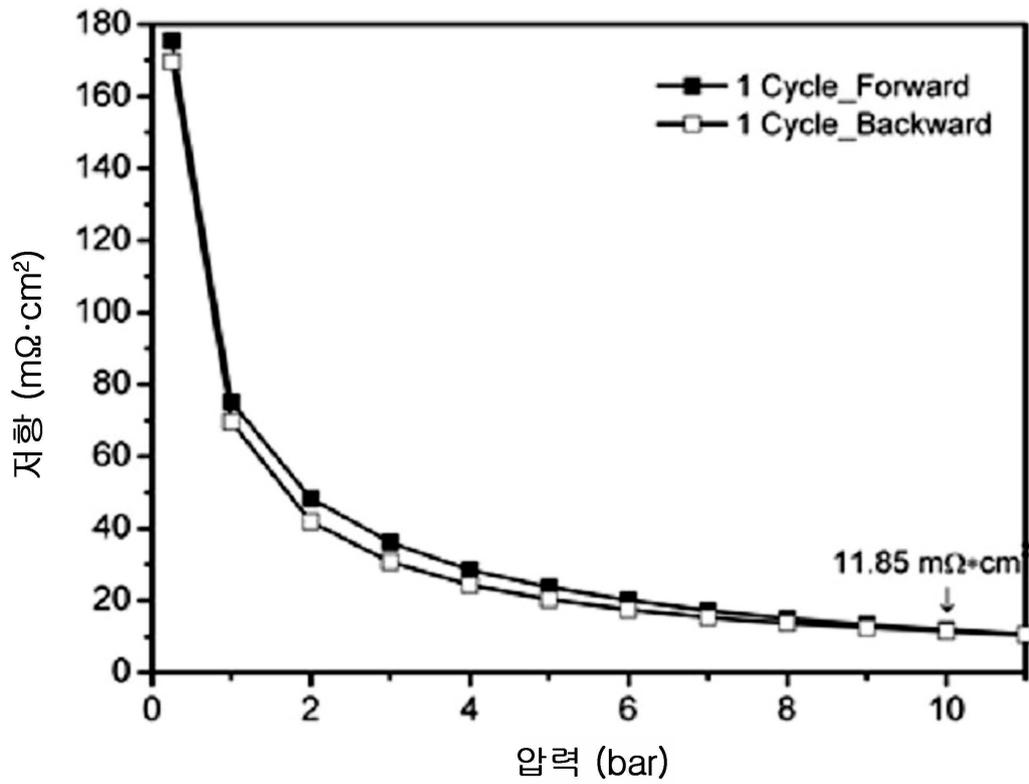
도면9



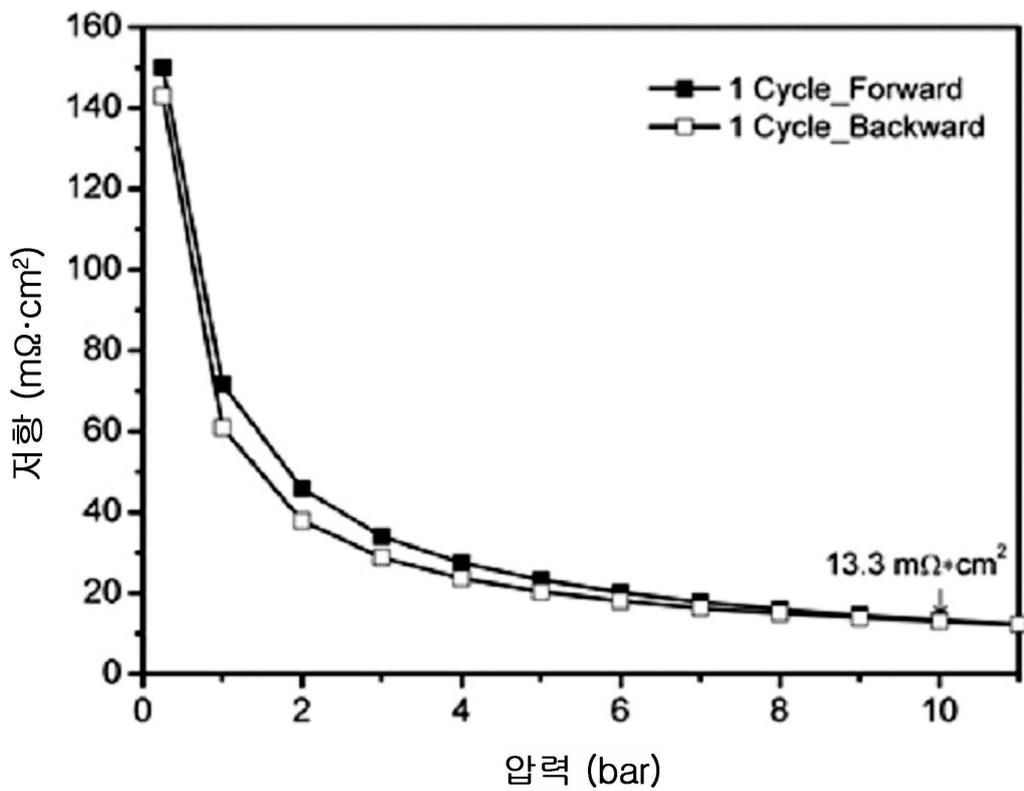
도면10



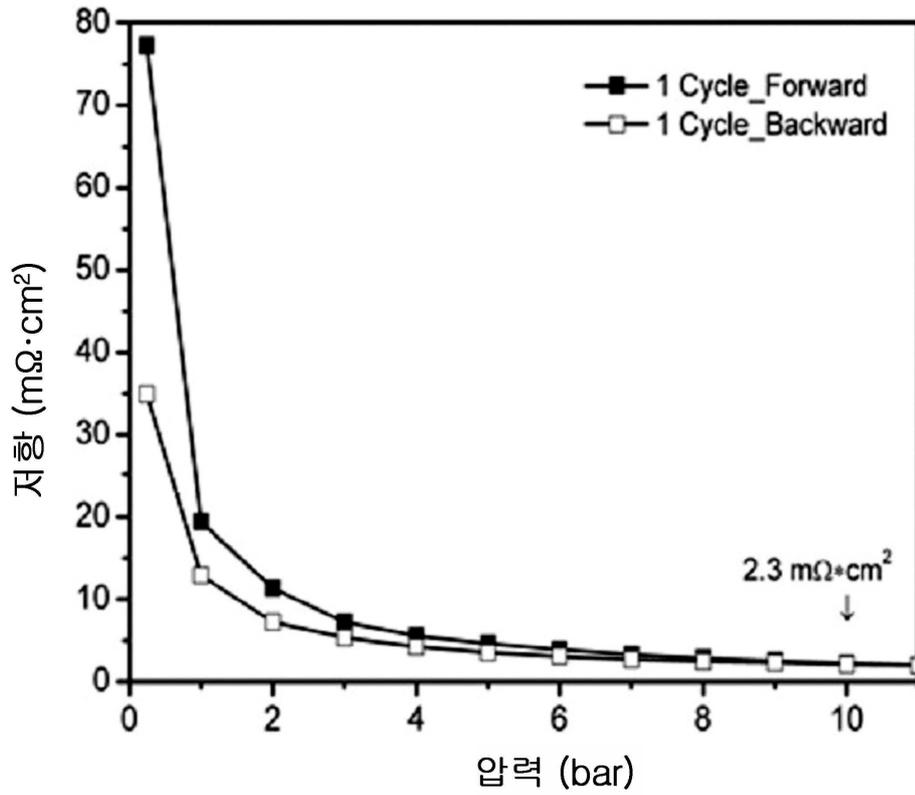
도면11



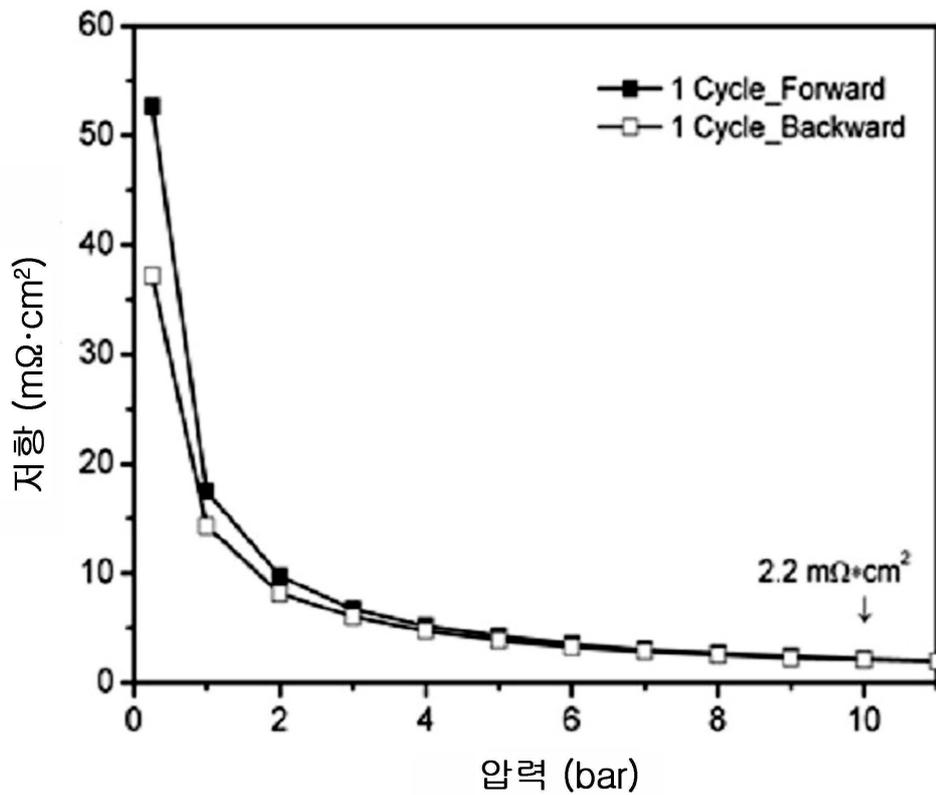
도면12



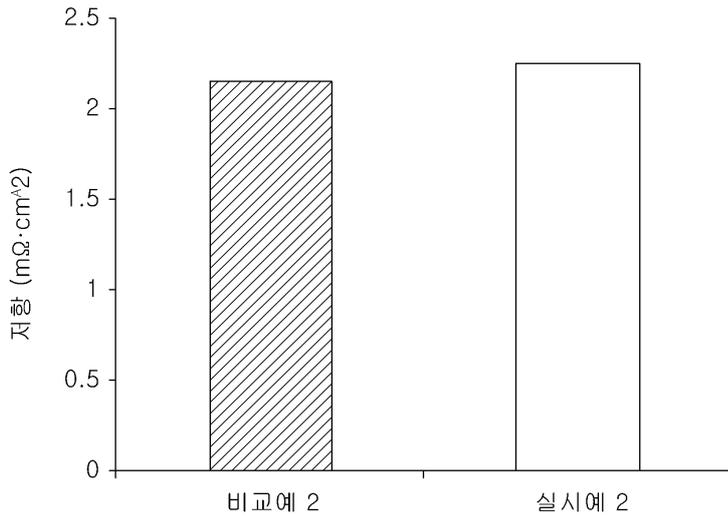
도면13



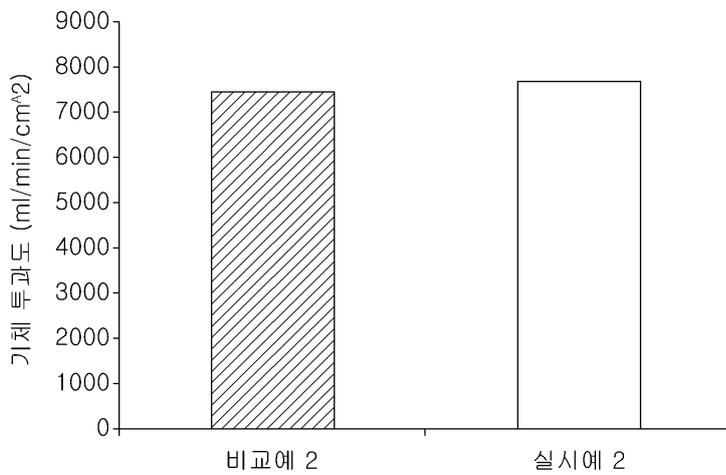
도면14



도면15



도면16



**【심사관 직권보정사항】**

**【직권보정 1】**

**【보정항목】** 청구범위

**【보정세부항목】** 청구항 9

**【변경전】**

제1항 내지 제6항 중의 어느 한 항에

**【변경후】**

제1항 및 제3항 내지 제6항 중의 어느 한 항에

**【직권보정 2】**

**【보정항목】** 청구범위

**【보정세부항목】** 청구항 8

**【변경전】**

제1항 내지 제6항 중의 어느 한 항에

**【변경후】**

제1항 및 제3항 내지 제6항 중의 어느 한 항에