

## 고분자 연료전지용 MEA 연속 코팅공정 개발

박 석희<sup>1)</sup>, 윤 영기<sup>2)</sup>, 김 창수<sup>3)</sup>, 이 원용<sup>4)</sup>

### Continuous Coating Process Development for PEFC Membrane Electrode Assembly

Seokhee Park, Younggi Yoon, Changsoo Kim, Wonyong Lee

**Key words** : PEFC(고분자연료전지), Membrane electrode assembly(막전극집합체), Continuous process (연속공정), Catalyst slurry(촉매슬러리), Transfer(전사)

**Abstract** : Membrane electrode assembly (MEA) for polymer electrolyte fuel cell (PEFC) are commonly prepared in the research laboratory by spraying, screen-printing and brushing catalyst slurry onto membrane or other support material like carbon paper or polyimide film in a batch style. These hand applications of the catalyst slurry are painstaking process with respect to precision of catalyst loading and reproducibility. It has been generally mentioned that the adoption of continuous process is very helpful to develop the reliable product.

In the present work, we report the results of using continuous type coater with doctor-blade to coat catalyst slurry for preparing the MEA catalyst layers in a faster and highly reproducible fashion. We show that while expectedly faster than batch style, the machine coater requires the use of slurry of appropriate composition and a properly selected transfer decal material in order to achieve superior MEA platinum loading reproducibility. To make highly viscous catalyst slurry that is imperative for using coater, we use 40wt.% Nafion solution and minimize the content of organic solvent. And the choice of proper high surface area catalyst is important in the viewpoint of making well-dispersed slurry.

After catalyst coating onto the support material, we transferred the catalyst layer to both sides of Nafion membrane by hot-pressing. In this case, the degree of transfer was influenced by hot-pressing condition including temperature, pressure, and time. To compare the transferring ability, we compared so many films and detaching papers. And among the support, polyethylene terephthalate (PET) film shows the prominent result.

#### subscrip

MEA : membrane electrode assembly

문제점을 가지고 있다. 첫 째 브러시, 스프레이 또는 스크린프린팅[1] 등의 방법으로 전해질 막에 전극촉매 층을 코팅하는 경우, 제작시간이 무척 길어 많은 양의 막전극집합체를 만들기가 힘이 들고 둘째로 각 막전극집합체마다 촉매담지량 및 두께편평도를 유지하기가 힘이 들어 전체적으로 재현성이 크게 떨어진다. 일반적으로 많이 사

#### 1. 서론

요즈음 고분자 연료전지는 높은 전류밀도, 귀금속 촉매 담지량 감소, 내구성 증대 등으로 다양한 제품에 적용되고 있다. 그러나 몇몇 막전극집합체(MEA) 제조회사에서 양산하는 경우를 제외하고는 고분자 연료전지의 핵심인 막전극집합체를 연구소나 학교에서 직접 제작하는 경우 몇 가지

- 
- 1) 한국에너지기술연구원  
E-mail : skipark@kier.re.kr  
Tel : (042)860-3048 Fax : (042)860-3104
  - 2) 한국에너지기술연구원  
E-mail : yoonyg@kier.re.kr  
Tel : (042)860-3506 Fax : (042)860-3104
  - 3) 한국에너지기술연구원  
E-mail : cskim@kier.re.kr  
Tel : (042)860-3573 Fax : (042)860-3104

용하는 Decal 방법의 경우, Kepton 등의 고분자 필름 위에 촉매 슬러리를 코팅한 다음 핫프레스를 이용하여 전해질막에 전사하는 방법을 사용하는데 공정에 따라 짧게는 반나절 길게는 며칠이 소요된다. 그리고 만들어진 막전극접합체들이 촉매담지량 및 두께편평도가 서로 달라 성능의 불균일성, 성능 감소의 원인이 된다. 따라서 이번 실험에서 사용되었던 부분적으로 자동화된 연속공정을 적용하면 동일한 조건의 테스트 샘플을 대량으로 만들 수 있으며 특히 백금담지량에 대한 특성 평가를 위해 재현성 있는 막전극접합체의 제작이 가능하다.

이번 실험에서는 연속공정을 위해 모터에 의해 구동되는 롤을 통해 촉매 슬러리를 공급하고 닥터 블레이드 사용하여 코팅기재 위에 일정한 두께로 촉매를 코팅하는 기기를 사용하였다. 이를 위해 적당한 조성 및 점도를 가진 촉매슬러리의 개발이 필요하고 최적의 전사가 일어나는 코팅기재의 선택도 중요하다.

## 2. 실험

코팅 공정에서 가장 중요한 최적의 슬러리 제조에 주안점을 두었으며 이와 더불어 연속적으로 촉매층 코팅이 가능한 코터의 공정조건 및 건조된 촉매층을 나피온막으로 전사하는 실험을 수행하였다.

### 2.1 슬러리 제조

일반적으로 손으로 하는 코팅에서 사용하는 묽은 촉매 슬러리와는 달리 용매량을 최대한 줄여 높은 점도의 슬러리를 만들었으며 첨가제의 사용을 최대한 줄였다. 사용한 촉매는 표면적이 상당히 큰 40wt% Pt/C(HiSPEC 4100, Johnson Matthey)였고 생성된 전극에서의 용이한 이온 전달을 위해 나피온 용액(DuPont Nafion Solution, 40wt%)을 추가하였다. 약간의 물 이외에는 추가적인 용매를 사용하지 않았으며 초음파 교반기(3210, Branson)와 Pulverizer(T25 Basic, IKA WERKE)를 이용하여 잘 혼합한 뒤 Aspirator(VE-11, JEIOTECH)에서 탈포과정을 거치고 점도를 조정하여 최종 슬러리를 얻었다. 만들어진 슬러리는 연속식 코터(Basecoater BC-12, Cotema)에 장착된 슬러리 탬에 붓고 PET 필름 위에 코팅을 하였다.

Table 1 코터 운전 조건

코팅두께(μm)	40	
PET 필름 이송 속도(cm/min)	10	
건조구간 온도(℃) - 1구간	30	
	2구간	50
	3구간	50

### 2.2 코터 운전

코터의 최적 운전 조건을 구하기 위해 PET 필름 이송 속도 및 3개로 나누어진 건조구간의 온도를 바꿔가며 균열이 없고 완전히 건조가 되는 공

정 조건을 도출하였다. 높은 점도의 슬러리와 코팅두께를 낮춤으로서 짧은 시간에도 표면이 균일한 전극층을 얻을 수 있었다.

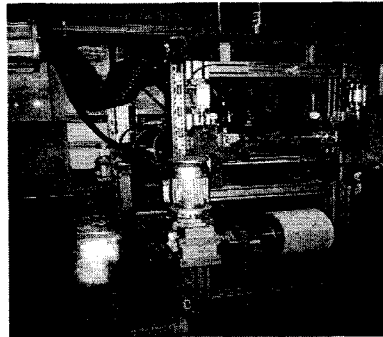


Fig. 1 코터 및 코팅 공정

### 2.3 전사

건조가 끝난 촉매는 코팅기재와 같이 적당한 크기로 잘라 고분자 전해질막(Nafion 112, DuPont)을 사이에 두고 양면에 동시에 전사를 시켰다.

## 3. 결과 및 토의

슬러리 제조에는 촉매의 선택이 중요하고 균열이 없는 촉매층을 얻기 위해서는 슬러리내의 고형분의 비율을 높여야 한다. 두께 편평도가 뛰어난 막전극접합체를 만들기 위해서는 고분자막으로 완벽하게 전사되는 코팅기재를 찾아내는 것이 중요하다. 또한 코팅기재의 선택에 있어서 기재 표면에 박막으로 입혀져 원활한 전사를 도와 주는 물질의 선택도 중요하다.

### 3.1 슬러리 분산

촉매 슬러리를 제조하기 위해 사용된 Pt/C 촉매는 Johnson Matthey의 다른 촉매들에서 일반적으로 담체로 사용되는 카본블랙 XC72R 대신 상대적으로 표면적이 큰 활성탄소 AC01인데 만들어진

촉매슬러리의 상태가 우수하였다. 표면적이 큰 촉매를 사용함으로써 슬러리의 분산이 더 좋아져서 슬러리의 균일성이 증가한 것으로 보인다.

### 3.2 코팅조건 도출

슬러리담에 부어진 촉매슬러리는 닥터 블레이드를 거쳐 40 $\mu$ m 두께의 박막으로 코팅되었다. 건조된 후의 두께는 슬러리 내의 고형분 비율과 관련이 있으며 이번 실험에서는 약 10 $\mu$ m 두께의 전극을 형성하였다. 분당 10cm의 PET 필름 이동속도에서 건조는 잘 일어났고 이는 슬러리 제조 시 용매의 사용을 최대한으로 줄였으며 점도를 높였기 때문이다. 건조구역의 온도는 상온에 가깝게 30/50/50 $^{\circ}$ C로 설정하였으며 건조온도를 더 낮추는 추가적인 실험을 진행할 예정이다. 실제 건조 온도나 열풍의 유속이 빠를 경우 촉매가 건조되면서 균열이 발생할 확률이 높다.

### 3.3 전사테스트

건조가 된 전극은 25cm<sup>2</sup>의 크기로 PET 필름과 같이 절단한 뒤 나뉘은막으로 전사를 시켰는데 최적의 코팅기재를 선택하기 위하여 PET 필름(MRX50/MRA50/MRF50, Mitsubishi), PTFE 필름(YT-100FR, YOUNGWOO), KEPTON 필름(DuPont), 이형지(64GPW/11EPS/55EPW, OJI Paper)의 전사율을 비교하였다. 전사를 위해서 핫프레스(CARVER)를 사용하였는데 온도, 압력, 시간을 바꾸어가며 최적 전사조건에 대해 실험하였다. 실험결과 미쯔비시 PET 필름 중 MRX50이 가장 전사가 잘 일어났으나 전사율은 80%로 완전한 전사조건을 잡기 위해서는 추가적인 실험이 필요하다.

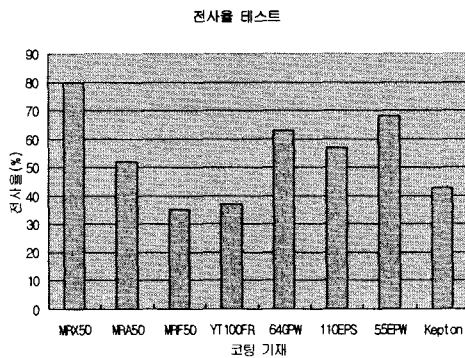


Fig. 2 고분자막으로의 촉매층 전사를 테스트

### 3.4 MEA 두께 편평도

건조가 끝난 후에 Thickness Gauge로 측정된 전극층의 두께는 약 10 $\mu$ m였으며 이것을 나뉘은 전해질막에 전사한 다음 전해질 막과 전극층의 두께를 레이저로 측정하였다. 전사후의 두께는 너무 얇아 Thickness Gauge로는 측정이 힘들고 레이저로 각각을 측정하여 최종적인 전극층 두께를 구하였다. 레이저로 측정한 전해질 막의 두께는 평균 43.7 $\mu$ m였으며 전극층의 두께는 연료극과

공기극 각각 평균 4 $\mu$ m였다.

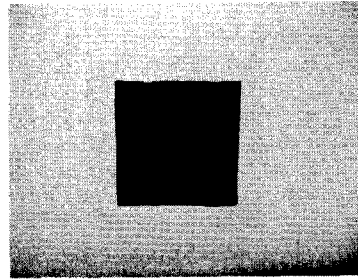


Fig. 3 전사되어 만들어진 MEA

## 4. 결론

좋은 막전극집합체를 만들기 위해서는 여러 가지 조건이 충족되어야 하는데 우선적으로 코팅 방법에 가장 적합한 조성으로 슬러리를 만들어야 하는데 연속식 코터에는 상대적으로 표면적이 큰 촉매를 사용하는 것이 더 적합한 것으로 보인다. Johnson Matthey사의 촉매의 경우, HiSPEC 4100이 적당한 것 같다. 둘째로는 코터의 공정 조건을 잡는 것이 중요하다. 필름 이동속도와 건조온도가 중요한 변수인데 40 $\mu$ m 이하의 박막을 코팅할 경우에는 30-50 $^{\circ}$ C 정도의 상온 가까이에서 건조해도 충분하였다. 마지막으로 최적의 전사조건을 도출하는 것이 필요하다. 물론 여기에는 코팅 기재의 선택과 밀접히 연관되어 있다. 현재까지는 최상의 코팅기재 또는 전사조건을 찾지 못했지만 미쯔비시사의 MRX50 PET 필름을 사용하였을 경우, 약 80%의 전사율을 보여 가장 좋은 결과를 나타내었다. 향후 유기용매 및 Cold Pressing 등을 이용한 최적의 전사 조건 도출 및 새로운 코팅 기재의 테스트를 같이 진행할 계획이다.

## References

- [1] C.S Kim, Y. G. Chun, D.H. Peck, D. R. Shin. Int. A novel process to fabricate membrane electrode assemblies for proton exchange membrane fuel cells. J. Hydrogen Energy. 1998;23:1045
- [2] L. J Hobson, Y. Nakano, H. Ozu, S. Hayase. Targeting improved DMFC performance. J. Power Sources. 2002;104:79