

## PEMFC용 복합소재 분리판을 위한 2단계 제조공법의 제조 조건에 대한 연구

허 성일<sup>1)</sup>, 오 경석<sup>2)</sup>, 윤 진철<sup>3)</sup>, 양 유창<sup>4)</sup>, 한 경섭<sup>5)</sup>

### A study on fabrication condition of the 2-step manufacturing method for PEMFC composite bipolar plates

Seongil Heo, Kyeongseok Oh, Jincheol Yun, Yoochang Yang, Kyungseop Han

**Key words** : PEMFC(고분자 전해질 연료전지), composite bipolar plate(복합소재 분리판),  
preform(예비성형체), expanded graphite(팽창흑연)

**Abstract** : The 2-step manufacturing method consisting of preforming and stamping processes was developed to manufacture composite bipolar plates for PEMFCs. The preform was composed of expanded graphite, graphite flake and phenol resin. Precuring conditions were optimized by checking the electrical conductivity, flexural strength and microstructure. Precuring temperature (100°C) slightly above the melting point of phenol powders (90°C) induced moderate curing, but also prevented excessive curing. Preforms utilizing the tangled structure of expanded graphite were easily fabricated at low pressure of 0.07-0.28MPa. The proper precuring time, 5min, was determined to fabricate the preform stably because insufficient and excessive precuring deteriorated the flexural strength of composite bipolar plates.

#### 1. 서 론

최근 연료전지는 화석 연료의 대안으로서 많은 관심을 끌고 있다. 그 중에서도 PEMFC는 높은 에너지 밀도와 낮은 작동 온도 등의 장점으로 인해 자동차 동력원, 휴대용 전원, 가정용 발전 등의 용도로 관련 기업 및 연구소에서 활발히 연구되고 있다. 그러나 아직은 높은 제작 단가와 내구성에 대한 신뢰 부족이 상용화의 걸림돌이 되고 있다[1].

특히, 분리판은 PEMFC에서 가장 가격 비중이 높은 요소 중의 하나로 알려져 있다. 분리판은 PEMFC 내에서 i) 단위 셀 간의 전류 전달, ii) 수소 및 냉각수의 이동통로 그리고 iii) 각각의 셀을 구조적으로 지지하는 등의 중요한 역할을 하는 요소이다. 다양한 작동 조건을 고려하여 그동안 여러 소재가 PEMFC용 분리판의 후보로 연구되어 왔다. 주로 사용되고 있는 기계가공 분리판은 흑연 평판에 채널을 가공하였으나, 가공비용이 너무 비싸 상용화하기에는 어려움이 따른다. 금속 분리판은 부식에 약할 뿐만 아니라 성형 시 발생하는 스프링백으로 인해 정교한 제작이 힘들다. 이러한 단점을 극복하기 위해, 전기 전도성이 우수하고 원하는 형상으로의 성형이 용이한 전도성 복합재

료에 대한 연구가 수행되고 있다[2].

복합소재 분리판의 성능을 최적화하기 위해, 흑연 분말의 크기와 형상에 대한 실험 및 이론적인 연구가 수행되었다. Richard 등[3]은 다양한 충전재와 충전 비율에 대해 소재의 특성을 연구하였으며, 흑연입자의 크기에 따른 분리판의 물성 변화에 대한 연구도 이어졌다[4, 5]. 일반적으로는 입자가 작아지면 기계적 강도가 높아지며, 이러한 경향은 실험을 통해서도 확인되었다. 또한

- 1) 포항공과대학교 대학원  
E-mail : seunghun@postech.ac.kr  
Tel : (054)279-5893 Fax : (054)279-5899
- 2) 포항공과대학교 대학원  
E-mail : oks@postech.ac.kr  
Tel : (054)279-5893 Fax : (054)279-5899
- 3) 포항공과대학교 대학원  
E-mail : biwater@postech.ac.kr  
Tel : (054)279-5893 Fax : (054)279-5899
- 4) 현대자동차  
E-mail : ycyang@hyundai-motor.com  
Tel : (031)899-3202 Fax : (031)368-6787
- 5) 포항공과대학교  
E-mail : kshan@postech.ac.kr  
Tel : (054)279-2163 Fax : (054)279-2845

구상에 비해 판상 흑연이 전기 전도도와 기계적 강도의 측면에서 보다 우수하였으며, 강도 보강을 위해 탄소섬유가 사용되기도 하였다[5, 6].

이러한 노력에도 불구하고, 복합소재 분리판을 성공적으로 상용화하기 위해서는 생산효율을 보다 높여야 한다. 이를 위해 사출성형을 이용하는 연구가 활발히 이루어지고 있으나, 아직 분리판의 대면적화와 박판화 추세를 만족시키기에는 한계가 있다[7]. 최근에는 생산성을 높이기 위해, wet-lay sheet를 이용하는 등 새로운 제조공법 개발에 대한 연구도 다양하게 시도되고 있다[8].

본 연구에서는 복합소재 분리판의 생산성 증가를 위해, 예비성형체를 이용한 2단계 제조공법이 개발되었다. 예비성형과 스탬핑 공정은 복합소재 분리판의 전기 전도도와 굽힘 강도를 측정함으로써 최적화되었으며, 이러한 결과는 미세구조의 관찰을 통해 뒷받침되었다.

## 2. 실험

### 2.1 소재

본 연구에서는 고분자 수지로써 낮은 수축률, 높은 내부식성과 기계적 강도를 가지는 열경화성 수지인 페놀 수지(Kolon Chemical, Korea)를 사용하였다.

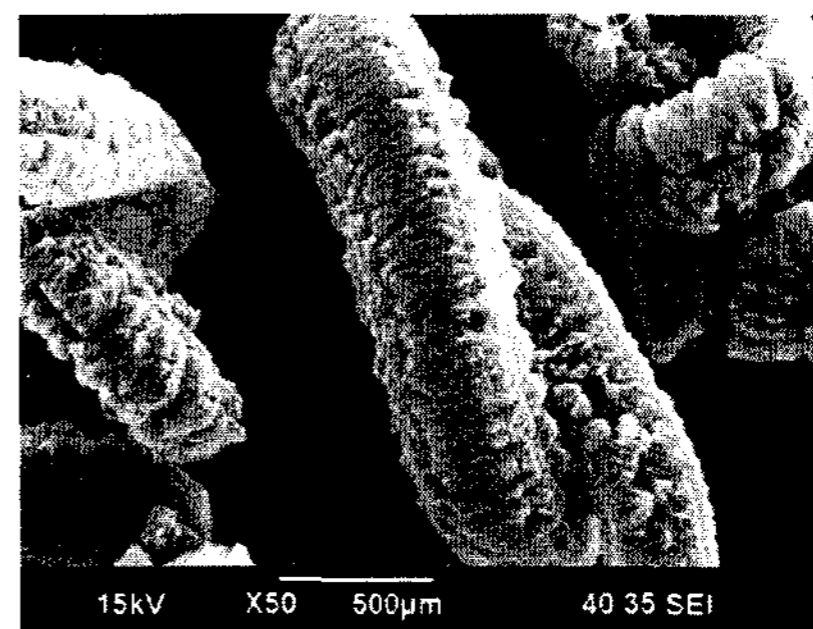
전도성 충전재로는 평균직경  $200\mu\text{m}$ 인 흑연분말과 팽창 흑연(이상 Hyundai-kish, Korea)을 사용하였다. 팽창흑연은 매우 많은 기공을 가지고 있으며 입자들이 서로 꼬이기 쉬운 벌레 형태를 취하고 있다. 팽창흑연의 이러한 성질로 인해, 낮은 압력에서 바인더가 없이도 예비성형체의 형상을 유지할 수 있게 된다. 팽창흑연은 압축이 진행되면 처음에는 입자들이 금형의 빈 공간 내에서 재배열되다 임계압력(rigidity threshold)을 넘어서면 입자가 찌그러지기 시작한다[9]. 압축된 팽창흑연은 Fig. 1b와 같이 원래의 판상 흑연분말과 유사한 형상으로 되돌아간다.

### 2.2 예비성형체 제작(Preforming)

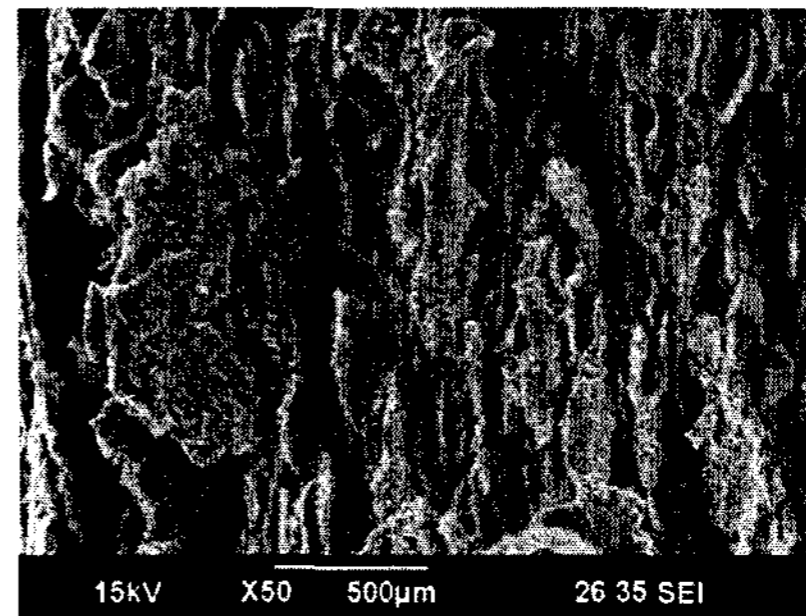
예비성형체 제작은 분말 혼합과 예비성형으로 이루어진다. 먼저 팽창흑연, 흑연분말 그리고 페놀분말을 7.5:67.5:25wt.%의 비율로 준비한 뒤, 약 30분 동안 흔들어서 섞는다. 혼합분말은 상온에서 알루미늄 금형에 고르게 분산시킨 다음  $100^\circ\text{C}$ 로 예열된 Hot press에서 예비성형 공정을 거치게 된다. 예비성형 온도는 페놀분말의 과도한 경화를 방지하기 위해 페놀분말의 녹는점인  $90^\circ\text{C}$ 보다 약간 높은 온도인  $100^\circ\text{C}$ 로 고정되었다. 예비성형의 압력과 시간을 최적화하기 위해, 예비성형 압력과 시간은 각각 0.07-0.7MPa 그리고 3-20분 사이에서 변화되었다.

### 2.3 스탬핑(Stamping) 공정

제조된 예비성형체를  $150^\circ\text{C}$ 로 가열되어 있는 스틸 금형에서 30초 동안 예열시켜 주면, 예비성형 공정 동안 예비 경화된 페놀 수지가 유동성을 다시 확보하게 된다. 이때, 높은 압력을 가해주면



(a) Expanded graphite (worm-type)



(b) Horizontally compressed expanded graphite

Fig. 1 Shape of Expanded graphite

예비성형체가 압축되면서 페놀수지가 팽창흑연과 흑연분말의 공극 사이로 침투하게 된다.

스탬핑 공정의 압력과 시간은 각각 0~15MPa 그리고 1~5분 사이에서 변화되었으며, 실험을 통해 적절한 공정 조건을 결정하였다.

### 2.4 실험 방법

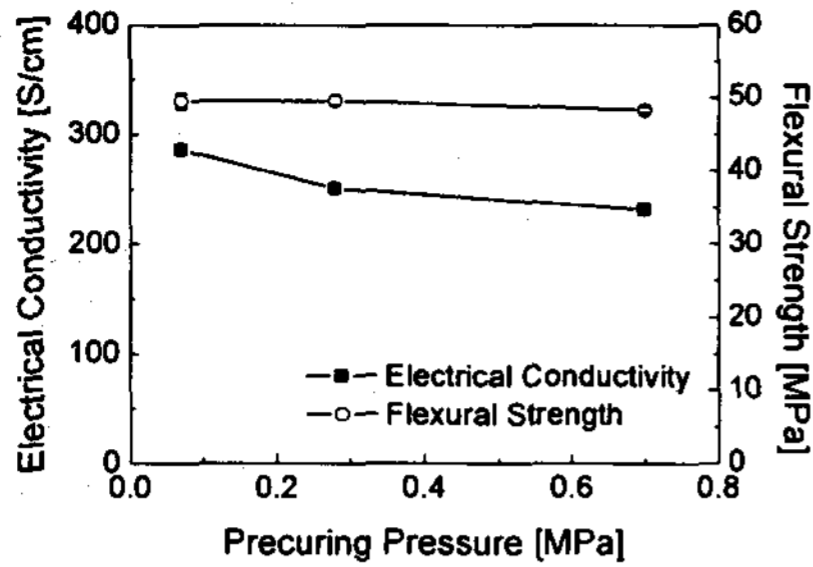
제조된 복합소재 분리판의 성형 상태 및 팽창 흑연의 첨가에 따른 치밀화 거동 변화를 조사하기 위해, 아르키메데스의 원리를 이용한 밀도 측정 (ASTM D792-00)과 전자 주사현미경(Philips XL 3S)을 이용한 미세구조 분석을 실시하였다.

전기 전도도 측정은 4단자법(4 point probe method)을 이용하였다. 굽힘 강도는 3점 굽힘 실험(ASTM D790-02)을 통해 측정하였으며 각각의 실험은 UTM(Shimadzu, 5ton)을 이용하였다.

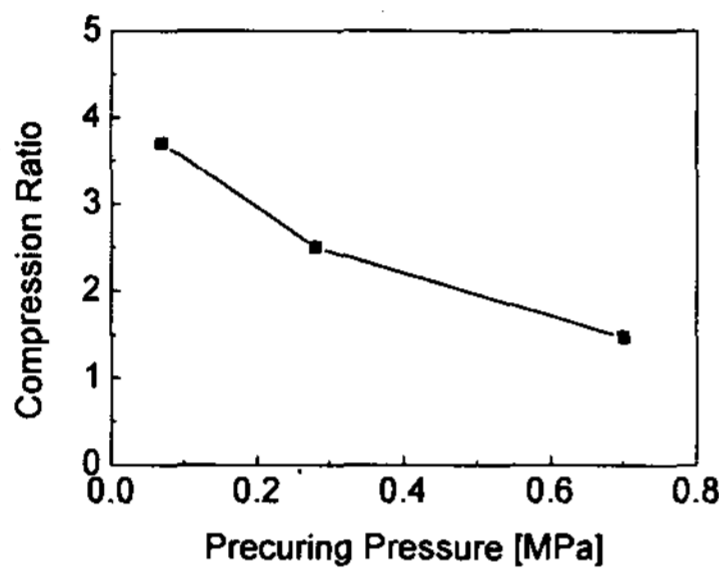
## 3. 결과 및 토의

### 3.1 예비성형 압력

Fig. 2a는 예비성형 압력이 높아짐에 따라 복합소재 분리판의 물성이 약간 감소하고 있음을 보여준다. 이는 페놀분말이 녹아서 흑연입자 사이에 고루 퍼지기 전에 압축성형이 진행되었기 때문으로 판단된다. 그러나 PEMFC용 분리판에 요구되는 물성과 비교하면 미미한 변화이다.



(a) Electrical conductivity and flexural strength



(b) Compression ratio

Fig. 2 Material properties of composite bipolar plates according to the precuring pressure

높은 예비성형 압력은 성형성 면에서도 불리한 결과를 나타내었다. 예비성형체는 추가적인 지지재의 주입 없이 최종 형상으로 압축되어야 하므로 압축비가 성능 및 성형성에 있어서 중요한 인자이다. Fig. 2b는 예비성형 압력에 따른 압축비를 나타내며, 압축비는 다음과 같이 계산되었다.

$$\text{압축비} = \frac{\text{복합소재 분리판의 밀도}}{\text{예비성형체의 밀도}} \quad (1)$$

예비성형 압력이 0.7MPa로 증가되었을 때, 예비성형체의 밀도는 1.26g/cm<sup>3</sup>이며 이때, 압축비는 약 1.5까지 낮아지고 있다. PEMFC에 사용되는 분리판은 수소와 냉각수가 흐르는 통로의 역할을 하므로 복잡한 형태의 유로(channel)를 가지고 있다. 그러므로 유로를 안정적으로 제작하기 위해서는 예비성형체가 적어도 2이상의 압축비를 가지는 것이 좋다.

이러한 결과를 바탕으로, 예비성형 단계에서는 예비성형체의 형상을 유지할 수 있을 정도의 압력만 가해주는 것이 최종 물성에 유리함을 알 수 있다. 그러나 0.07MPa 이하에서는 예비성형체의 강도가 너무 약해 부서질 위험이 높아 제조 시에 세심한 주의가 필요하다. 그러므로 기본 물성 및 생산성을 고려하였을 때, 예비성형 압력으로는 0.28MPa가 적절하였다.

### 3.2 예비성형 시간

예비성형 시간 또한 복합소재 분리판의 물성에 큰 영향을 미치는 변수이다. Fig. 3은 예비성형

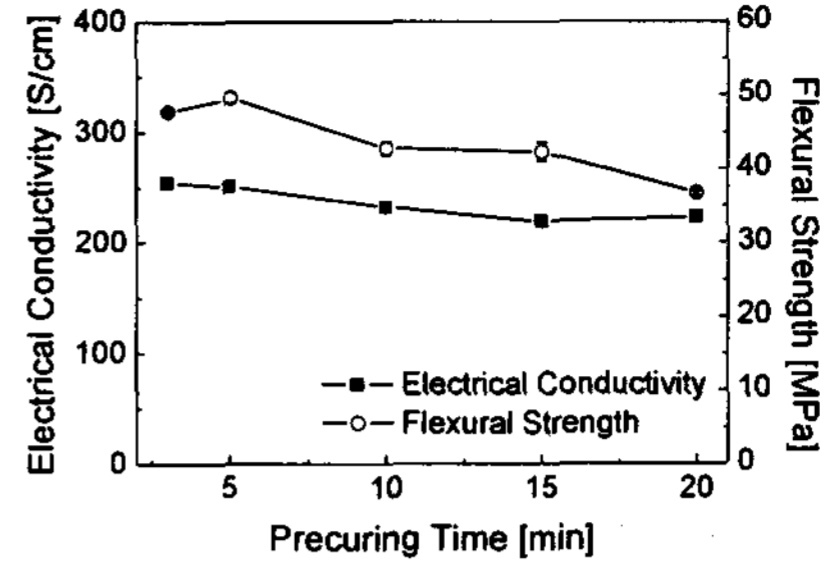


Fig. 3 Electrical conductivity and flexural strength according to the precuring time

시간에 따른 굽힘 강도와 전기 전도도의 변화를 나타낸다. 예비성형 시간이 3분일 때에는 5분에 비해 굽힘 강도가 낮은 것으로 보아 경화시간이 부족했음을 알 수 있다. 굽힘 강도는 예비성형 시간이 5분일 때 가장 높은 값을 나타낸 뒤, 시간이 길어짐에 따라 지속적으로 하강하고 있으며 20분에 이르면 기준 강도인 40MPa를 하회하고 있다.

이러한 강도의 변화는 소재의 치밀화와 밀접한 관계가 있다. 예비성형 시간이 길어지면 페놀수지의 경화가 과도하게 진행되어, 스탬핑 공정 시 예열을 해주어도 페놀이 유동성을 확보하기가 어려워지게 된다. 그 결과, 스탬핑 후에도 페놀수지가 흑연분말 사이에 고르게 퍼지지 못하고 국부적으로 뭉치게 되어 예비성형체의 원활한 치밀화를 방해한다. 이러한 경향은 예비성형 시간이 3분에서 20분으로 길어지면서, 복합소재 분리판의 밀도가 1.863g/cm<sup>3</sup>에서 1.816g/cm<sup>3</sup>로 점진적으로 떨어지고 있는 것으로도 재확인할 수 있다. 이러한 페놀의 뭉침 현상이 복합소재 분리판의 강도를 약화시키는 주요인으로 작용하게 된다.

굽힘 강도와 달리, 전기 전도도는 예비성형 시간이 늘어남에 따라 지속적으로 하강하고 있는 것을 볼 수 있다. 이것은 앞서 살펴보았듯이, 소재의 치밀화 부족으로 인한 것임을 알 수 있다. 페놀수지가 뭉친 지역이 흑연 간의 전기적 네트워크 형성을 방해하여 전기 전도도가 감소하는 것이다. 이러한 경향은 밀도가 감소하는 경향과 유사한데, 이는 전기 전도도가 밀도 변화와 밀접한 상관관계를 가지기 때문이다[6].

### 3.3 스탬핑 공정

Fig. 4는 스탬핑 압력에 따른 전기 전도도와 굽힘 강도의 변화를 나타낸다. 스탬핑 압력이 증가함에 따라 전기 전도도와 굽힘 강도가 급격히 증가하다, 약 3.5MPa에서부터는 증가폭이 둔화된다. 그리고 10MPa에 이르면 소재의 치밀화가 거의 완료되고 전기 전도도와 굽힘 강도가 더 이상의 증가를 보이지 않는다. 이러한 경향은 기존의 압축성형 공정에서 얻은 성형압력에 따른 물성 변화 결과와도 유사하다[5, 6].

스탬핑 시간은 복합소재 분리판의 물성에 큰 영향을 미치지 않았다. Fig. 5에 따르면 스탬핑 시간이 2분이 되면 이미 굽힘 강도가 최고치에 도달한 것을 알 수 있으며, 2분 이후에 전기 전도도가 다소 증가하긴 하나 물성 기준치와 비교하면 미미한 수준이다.

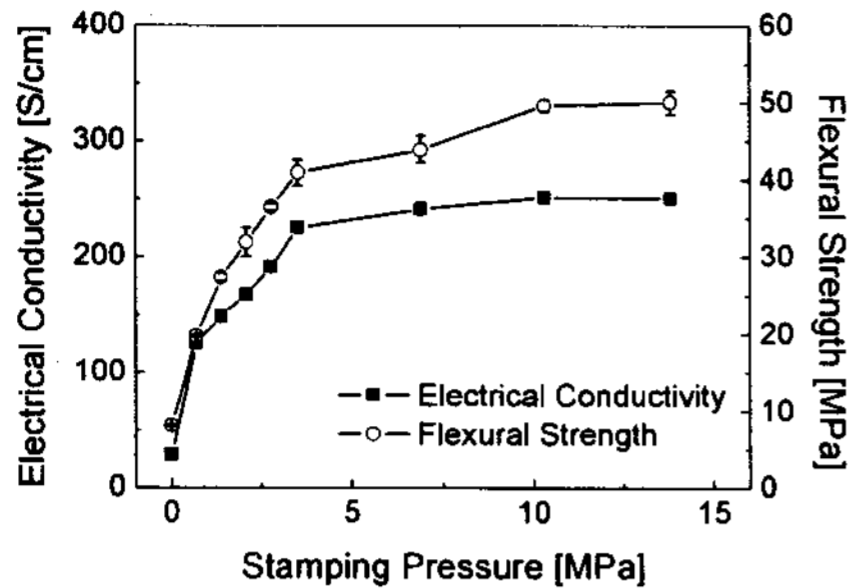


Fig. 4 Electrical conductivity and flexural strength according to the stamping pressure

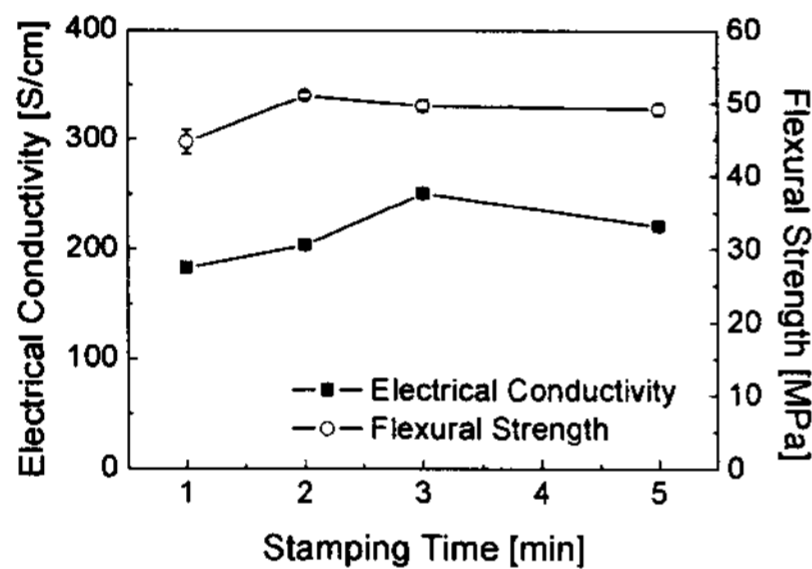


Fig. 5 Electrical conductivity and flexural strength according to the stamping time

예비성형체를 이용한 2단계 제조공법은 기존의 압축성형 공정에서 10분 이상 걸리던 고압성형 시간을 2~3분으로 단축시키는 것을 가능케 하였다. 또한 고온압축용 금형 내에서 흑연/고분자 혼합분말을 직접 분산시키는 번거로운 작업을 생략하였다. 이는 금형의 온도를 항상 고온(150°C)으로 유지할 수 있게 하여 생산효율이 획기적으로 증가하였다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 PEMFC용 분리판 제조를 위해, 예비성형체를 이용한 2단계 제조공법을 개발하였다. 성형공정은 제조된 복합소재 분리판의 전기적·기계적 특성 평가를 통해 최적화되었다. 이를 통해 얻어지는 결론은 다음과 같다.

1. 2단계 제조공법은 예비성형과 스탬핑으로 이루어지며, 2단계로 나뉜 성형공정은 제조 공정을 간편화하고 고압 성형 시간을 감소시킴으로써 양산화를 위한 기초를 마련하였다.

2. 예비성형 압력은 너무 낮으면 취급 시에 부서지기 쉽고, 너무 높으면 스탬핑 공정 시에 성형성이 떨어질 우려가 있다. 또한 예비성형 시간은 너무 짧으면 경화가 부족하고, 너무 길면 스탬핑 공정 동안 페놀수지의 유동성이 떨어진다. 이러한 조건을 만족시키기 위해 최적화된 예비성형 조건은 0.28MPa, 5분이다.

3. 스탬핑 압력 10MPa에서 소재의 치밀화가 완료되었으며, 2분의 스탬핑 공정만으로도 50MPa 이상의 우수한 굽힘 강도를 얻을 수 있었다.

#### 후기

본 연구는 산업자원부의 수소 연료전지사업단 지원을 받아 수행되었습니다.

#### References

- [1] P. Zegers, "Fuel cell commercialization: The key to a hydrogen economy," *Journal of Power Sources*, Vol. 154, 2006, pp. 497-502.
- [2] A. Hermann, T. Chaudhuri and P. Spagnol, "Bipolar plates for PEM fuel cells: A review," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 30, 2005, pp. 1297-1302.
- [3] Richard H. J. Blunk, Daniel J. Lisi, Yeong-Eun Yoo and Charles L. Tucker III, "Enhanced Conductivity of Fuel Cell Plates through Controlled Fiber Orientation," *AIChE Journal*, Vol. 49, No.1, 2003, pp. 18-29
- [4] H.C. Kuan, C.C.M. Ma, K.H. Chen and S.M. Chen, "Preparation, electrical, mechanical and thermal properties of composite bipolar plate for a fuel cell," *Journal of Power Sources*, Vol. 134, 2004, pp. 7-17.
- [5] S.I. Heo, J.C. Yun, K.S. Oh and K.S. Han, "Influence of particle size and shape on electrical and mechanical properties of graphite reinforced conductive polymer composites for the bipolar plate of PEM fuel cells," *Advanced composite Materials*, Vol. 15, 2006, pp. 115-126.
- [6] 허성일, 윤진철, 오경석, 한경섭, "흑연입자/탄소섬유 혼합 보강 전도성 고분자 복합재료의 전기적, 기계적 특성 연구," *한국복합재료학회지*, Vol. 19, No. 2, 2006, pp. 7-12.
- [7] A. Müller, P. Kauranen, A. von Ganski and B. Hell, "Injection moulding of graphite composite bipolar plates," *Journal of Power Sources*, Vol. 154, 2006, pp. 467-471.
- [8] B.D. Cunningham, J. Huang and D.G. Baird, "Development of bipolar plates for fuel cells form graphite filled wet-lay material and a thermoplastic laminate skin layer," *Journal of Power Sources*, Vol. 165, 2007, pp. 764-773.
- [9] A. Celzard, S. Schneider and J.F. Maréché, "Densification of expanded graphite," *Carbon*, Vol. 40, 2002, pp. 2185-2191.