

## 고분자 전해질 연료전지 분리판 개발 및 평가

\*안 성수<sup>1)</sup>, 오 재열<sup>2)</sup>, 이 경준<sup>3)</sup>

### Evaluation of developed bipolar plates for PEMFC

\*Seongsoo Ahn, Jaeyeol Oh, Kyoungjun Lee

**Key words** : Composite Bipolar Plate(복합재료 분리판), Graphite(흑연), Resol Phenol(레졸 페놀), I-V Curve Performance Evaluation(전압-전류 곡선 성능 평가)

**Abstract** : Bipolar Plates for PEMFC have been a key component of fuel cells with MEA, thus in this research they have been fabricated by a compression molding technique after mixing graphite powder with phenol resin. The results have shown the prominent properties compared with those by foreign advanced company with respect to the electrical conductivity and flexural strength. In addition, it has been carried out that the Voltage-Current characteristics comparison according to the unit cell experiments of bipolar plates. As a result, we have obtained good performances and we are going to research the molding feasibility of bipolar plate's flow channel.

#### Nomenclature

EC : Electrical Conductivity, S/cm  
FS : Flexural Strength, MPa  
HP : H<sub>2</sub> Permeability, cm<sup>3</sup>/cm<sup>2</sup>/sec

#### subscript

ICP : Inductively Coupled Plasma spectrometer  
TGA : Thermo Gravimetric Analysis  
EDS : Energy Dispersive Spectroscopy  
SEM : Scanning Electron Microscope

### 1. 서론

화석연료의 고갈 및 환경오염으로 인한 대체 에너지 확보의 일환으로 수소 연료전지에 대한 연구는 증가하고 있으며, 특히 가정용 수송용 실증사업에 적용된 PEMFC(Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell)는 연료전지 시장을 선도할 것으로 예상된다. PEMFC의 핵심부품은 MEA(Membrane Electrode Assembly)와 분리판으로 구성되어 있으며, 특히 분리판은 높은 가공비를 낮추고 대량생산이 적용되어야 할 부품이다<sup>1)</sup>.

분리판에 요구되는 조건으로는 전기전도도가 우수하며, 굴곡강도가 높으며, 기체 투과도가 낮아 전기화학 반응 이외에 직접 반응하는 기체의 비율이 낮추어야 하는 조건 등이 있다. 이를 위해

재료 개발단계에서 상기 조건을 만족시키기 위해 적절한 재료 선택이 이루어지며, 재료 선정 후 전지반응을 통해 성능 테스트가 진행된다. 선정된 분리판은 유로형상의 최적화에 따라 유로성형이 이루어지며, 성형적합성 유무에 근거하여 최종적인 분리판으로 제작된다. 현재는 분리판의 재료 개발 후 물성 및 성능에 의거한 연구가 이루어지고 있으며, Cost Down에 초점을 맞춘 분리판 개발을 진행 중인 것으로 조사되고 있다.<sup>2)</sup>

### 2. 분리판 재료 개발

분리판에 적용되는 재료는 흑연, 금속, 탄소 복합체 등이 있으며, 본 연구에서는 내부식성이 높고 제조원가가 낮은 탄소복합체를 이용한 재료 개발이 이루어졌다. 탄소복합체는 흑연 재료의 취성을 해결하기 위해 고분자 수지를 혼합하는 것을 특징으로 한다.

- 
- 1) LS전선 중앙연구소 신재생에너지 팀  
E-mail : simple@lscable.com  
Tel : (031)450-8450 Fax : (031)450-8337
  - 2) LS전선 중앙연구소 신재생에너지 팀  
E-mail : jyoh@lscable.com  
Tel : (031)450-8337 Fax : (031)450-8337
  - 3) LS전선 중앙연구소 신재생에너지 팀  
E-mail : kjlee@lscable.com  
Tel : (031)450-8324 Fax : (031)450-8337

## 2.1 재료

### 2.1.1 도전 재료

도전재료로서 사용되는 흑연은 분리판에서 70~90wt%의 비중을 차지하며 전기전도도와 굴곡강도, 기체투과도와 같은 분리판의 기본적인 물성에 영향을 미친다.

인조흑연(Synthetic Graphite)은 탄소 성분이 많은 원료 가루를 탄소화(carbonization), 흑연화(graphitization) 등의 열처리를 거쳐 제조하며, 천연흑연(Natural Graphite)에 비하여 순도가 높아 불순물로 인한 연료전지 스택에 있는 전극촉매 및 전해질 막 등에 오염을 줄이는데 유리한 것으로 알려져 있다. 따라서 본 개발에서는 인조흑연을 사용하였다.

### 2.1.2 고분자 재료

고분자 재료는 탄소복합체 분리판에서 10~30 wt% 정도의 비중을 차지하며 주성분인 흑연분말 사이에서 바인더(binder) 기능을 하고, 분리판의 대량 생산을 가능하게 하는 제조공정을 결정짓는 역할을 한다<sup>3)</sup>. 이는 어떤 고분자 재료를 선택하느냐에 따라 탄소복합체 혼합물의 혼련방법이 달라질 수 있으며, 전기전도도, 굴곡강도와 같은 제품의 특성과 성형성, 제조시간 등이 결정되기 때문이다. 분리판의 기본적인 사양을 만족시킬 수 있는 수지라고 판단되는 페놀수지를 이용하여 분리판 개발을 진행하였다.

## 2.2 공정

### 2.2.1 Mixing

본 연구에서 사용한 열경화성 수지의 경우 높은 흑연함량은 혼련물의 점도를 증가시켜 혼련 과정에서 온도상승이 불가피하여 혼련 중에 수지의 경화현상이 발생할 수 있다. 따라서 이를 해결하기 위해 혼련 장비를 선택적으로 사용해야 하며, 최적조건을 찾아내야 한다. 재료 혼련은 흑연분말이 고분자 수지에 균일하게 분산시키는 것이 주된 목적이다.

### 2.2.2 Molding

성형조건을 파악하고 설계된 재료의 특성을 평가할 목적으로 유로를 가공하지 않은 평판형태의 금형(130mm×120mm)을 사용하였고, 혼련공정을 통하여 만들어진 탄소복합체를 금형에 넣은 후, Hot Press를 사용하여 압축성형(compression molding) 방식으로 평판 분리판을 성형하였다. 만들어진 분리판은 물성 측정을 통해 최적의 성형 및 경화조건을 찾아내었고, 이를 위해 두께 및 성형 상태에 따라 온도와 압력, 시간을 바꾸어가며 제작하였다. 압축성형 조건은 Table. 1과 같은 온도/압력과 이에 상응하는 시간을 적용하였다.

|             | Condition     | Time(min) |
|-------------|---------------|-----------|
| Pre Heating | 50℃ 이하        | 10        |
| Pressing    | 200℃/10MPa 이상 | 40        |
| Curing      | 200℃ 이상       | 10        |

Table 1 Molding Condition

## 3. 분리판 간 특성 비교

제작된 분리판은 재료에 의한 물성 특성과 스택에 적용되었을 때 성능 특성으로 평가할 수 있다. 이를 위한 비교자료로 해외업체의 기존 분리판을 선택하였고(4개社), 이들과의 비교를 통해 자사에서 개발된 분리판의 성능을 파악하였다.

### 3.1 재료 특성 비교

재료적인 측면에서의 비교를 위해 TGA(흑연의 함량 비교), ICP(고분자 성분 파악), EDS(표면처리 여부 확인), SEM(분자구조 파악) 등을 수행하였다. 자사 제품의 측정 결과는 다음과 같다.

- 1) TGA분석을 통해 흑연의 함량을 알아 보았다. 재료 설계 시 혼입했던 흑연과 고분자 수지의 비율과 동일하게 결과가 나왔으며, 이를 근거로 타 분리판의 흑연함량을 측정하였다.

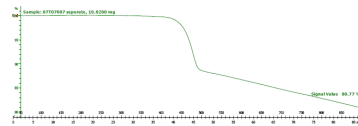


Fig. 1 Result of TGA

- 2) ICP분석을 통해 고분자의 성분을 파악하였고, 이를 제외한 불순물 함량 및 종류를 알 수 있었다.

| Element | Al | Fe | Na  | K  |
|---------|----|----|-----|----|
| (mg/kg) | 56 | 82 | 153 | 49 |

조건 : 0.1M 황산 24시간 속실험 추출

Fig. 2 Result of ICP

- 3) EDS분석을 통해 성분 원소를 정량적으로 파악하였고, 특히 표면/내부의 원소를 각각 알 수 있었다.

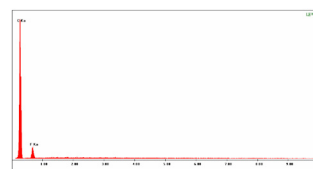


Fig. 3 Result of EDS

- 4) SEM분석을 통해 흑연 입자의 압착 정도를 알 수 있었고, 이로부터 자사 분리판과의 성형 조건의 차이를 유추할 수 있었다.

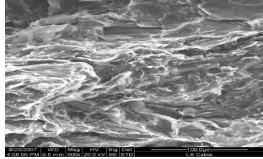


Fig. 4 Result of SEM

자사의 분리판을 통해 재료 특성 및 이에 대한 측정법을 검증하였고, 이로부터 해외업체의 분리판의 재료특성을 조사하였다. 타사 측정 결과를 Table 2에 정리하였다.

|     | 업체 A            | 업체 B   | 업체 C   | 업체 M   |
|-----|-----------------|--------|--------|--------|
| TGA | Ashing 함량 89.6% | 80.7%  | 90.1%  | 68.7%  |
| ICP | 추출원소 Ca, Al     | Na, Fe | Fe, Mg | Zn, Ca |
| EDS | 표면원소 O          | Cl     | F      | Al, O  |

Table 2 Comparison of Measured Results

### 3.2 물성 특성 비교

분리판이 연료전지 스택 내에서 기능을 수행하기 위하여 요구되는 사양을 DOE(Department of Energy)에서는 2010년을 목표로 다음과 같이 제시하고 있다<sup>4)</sup>.

- ① Electrical Conductivity(전기전도도, EC)
- ② Flexural Strength(굴곡강도, FS)
- ③ H<sub>2</sub> Permeability(수소투과도, HP)

상기에서 언급된 DOE Spec. 및 자사 개발 분리판과 해외업체의 분리판의 측정된 물성 특성은 다음과 같다.

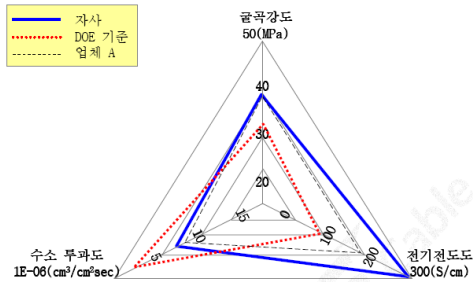


Fig. 5 Property of Bipolar Plates

전기전도도 특성은 4 Point Probe를 사용하여 상온에서 측정하였으며, 굴곡강도는 ASTM D-790에 의거하여 역시 상온에서 측정하였다. 또한 수소투과도는 Gas Permeation Analyzer를 통해 실제 PEMFC의 운전조건과 동일한 환경에서 분석을 수행하였다.

측정결과는 해외업체의 결과보다는 우수하였으며(업체 B/C/M 유사함), DOE Spec.과 비교하였을 때 수소투과도는 보완해야 할 것으로 판단되었다. 탄소복합체 분리판의 경우 전기전도도와 굴곡강도를 우선으로 개발하는데 주안점을 두었으나, 수소투과도를 개선하지 않는다면 스택 성능을 저하시킬 수 있는 요인이 될 것으로 판단된다.

## 4. 분리판 간 성능 비교

분리판의 재료 및 이에 따른 물성 특성은 중요한 측정인자이나 분리판은 연료전지의 부품이며, 따라서 분리판이 연료전지에 적용되었을 때 성능이 보다 중요한 인자라고 할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 자사 및 해외업체의 분리판의 단위전지 실험을 통해 분리판 성능을 알아보았다.

### 4.1 Unit Cell 실험

단위전지 실험 결과는 조건마다 대단히 큰 편차를 보이고 있으며, 정립된 실험조건은 아직 발표되지 않았다. 따라서 실험결과로서 의미가 있는 것은 동일한 조건에서 측정했을 때이며, 중요한 실험인자들을 Table 3에 정리하였다.

|    | 성능     | 운전 | 분리판                   |
|----|--------|----|-----------------------|
| 전압 | 1V 이하  | 가습 | 무 가습                  |
| 전류 | 40A 이상 | 유량 | 0.3L/sec              |
| 출력 | 60W 이하 | 압력 | 상압                    |
| 시간 | 30M 이상 | 온도 | 상온                    |
|    |        | 면적 | 200μm                 |
|    |        |    | 120cm <sup>2</sup> 이하 |

Table 3 Evaluation Specification

접촉저항으로 인한 손실로 인해 OCV는 최대 1.0V로 측정되었다. 또한 상대습도 80%이상의 실험실 조건으로 인해 가습은 하지 않았으며, 대면적(100cm<sup>2</sup>) 분리판을 적용하였기 때문에 추가적인 열 공급장치는 설치하지 않았다.

### 4.2 I-V 곡선 성능 평가

자사 개발 및 해외업체 4개의 분리판에 대한 단위전지 실험을 수행하였으며, 이에 따른 전압-전류 곡선 결과는 다음과 같다.

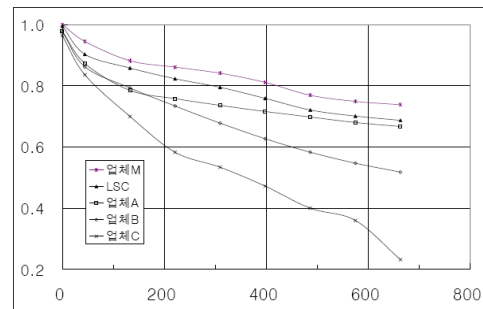


Fig. 6 Property of Bipolar Plates

동일 전압 대비 높은 전류밀도를 나타내는 것은 업체M의 분리판으로 업체M의 제품은 재료 및 물성 특성에서 좋지 않은 결과를 보였던 것과는 상반되게 단위전지 실험에서는 가장 성능이 좋은 것으로 측정되었다. 업체 M의 분리판 특징은 유로를 성형할 때 타 분리판과 달리 기계가공 대신 압축성형의 방법으로 유로까지 성형하였으며, 이와 같은 공정기술의 우수함이 성능에 영향을 미친 것으로 파악된다.

자사를 비롯한 A/B/C 제품은 기계가공을 통해 유로를 형성하였으며, 물성특성은 우수하나 수소

투과도가 높고 유로 공차로 인해 기체공급이 원활이 이루어지지 않은 것으로 파악된다.

특히, 업체 C의 경우 초기에 성능이 마감되는 것으로 측정되었는데 이는 업체C 제품의 성능 특성으로 기계가공으로 유로를 성형했을 경우 오히려 성능에 장애가 올 수 있다는 것을 나타내고 있다.

따라서 본 연구에서는 상기 결과를 통해 분리판의 성능 특성을 결정하는 것은 물성특성 및 성형기술에 따른 스택적합성이며 이는 압축성형과 같은 대량생산을 통해서도 얻을 수 있음을 알 수 있었다.

## 5. 결론

현재 국내연료전지 사업은 PEMFC의 경우 정부가 주도하여 가정용/수송용 실증사업을 전개하고 있다. 실증사업을 성공적으로 완료할 경우 본격적으로 시장이 개화되는 시점에는 연료전지 시스템을 비롯한 핵심부품에 대한 시장이 매우 커질 것이라는 것은 자명하다. 특히, 내부식성 측면을 고려했을 때 40000시간 이상의 수명이 요구되는 가정용/발전용의 경우, 탄소복합체 분리판이 가장 유리한 것으로 판단된다. 또한 기계가공 방식을 대신해서 성형공정에 의한 유로제작이 가능한 탄소복합체를 적용하면 대량생산을 통한 Cost Down 도 가능해질 것으로 예상된다.

탄소복합체 사용을 위한 재료 및 공정기술 개발을 통하여 수소투과도를 제외한 DOE 기준 및 해외 업체의 사양을 초과하는 특성수준을 확보하였다. 그러나 물성특성과 달리 단위전지에 실제로 적용하였을 때, 성능이 우수하게 구현되는 것은 물성특성과 대조적인 경우였으며 이는 성형기술을 통해 확보되었음을 알 수 있었다.

연료전지용 분리판 개발 시 분리판의 고유특성과 더불어 유로형상 및 스택에 미치는 영향인자 등이 고려되어야 할 것으로 판단된다.

향후 연료전지의 조기 상용화를 위하여 이와 같은 분리판 특성과 스택 성능과의 연계성과 병행하여 연구하되 분리판의 성형기술에 초점을 맞추어 개발을 추진할 예정이다.

## References

- [1] Allen Hermann, 2005, "Bipolar plates for PEM fuel cells: A review," *Int. J. of Hydrogen Energy*, 30, 1297 - 1302.
- [2] Biraj Kumar Kakati, 2007, "Differences in physico-mechanical behaviors of resol(e) and novolac type phenolic resin based composite bipolar plate for PEMFC," *Electrochimica Acta*, 52, 7330 - 7336.
- [3] 이희섭, 2006, "PEMFC용 복합재 분리판의 제작 비용 비교: 압축성형과 기계식 가공," *한국신재생에너지학회 추계*, pp 105 - 108.
- [4] E.A. Cho, 2004, "Characteristics of composite bipolar plates for polymer electrolyte membrane fuel cells," *Journal of Power Sources*, 125, 178 - 182.