

고분자전해질 연료전지용 새로운 타입의 복합재료 분리판의 특성연구

*김 종완¹⁾, 이 진선¹⁾, 선 경복²⁾, **이 중희²⁾

A Study on the Characteristics of New Type of Composite Bipolar Plate for the PEM Fuel Cell

*Jongwan Kim, Jinsun Lee, Kyungbok Sun, **Joonghee Lee

Abstract : Composite bipolar plates offer several advantages of low cost, light weight, and ease of manufacturing compared to traditional graphite plate. However, it is difficult to achieve both high electrical conductivity and high flexural strength. In this study, the hybrid carbons filled epoxy composite bipolar plates were fabricated to test electrical conductivity and flexural properties. Graphite powders were used as the main conducting filler and continuous carbon fiber fabrics were inserted to improve the mechanical properties of the composite. This hybrid composite showed improved in-plane electrical conductivity and flexural property. The moldability of the hybrid composite was also improved comparing to the continuous prepreg composite. This study suggested that the continuous carbon fiber inserted graphite/epoxy composites can be a potential candidate material to overcome the disadvantages of conventional graphite composite or continuous prepreg composite bipolar plates.

Key words : Fuel cell(연료전지), Bipolar plate(분리판), Compression molding(압축성형), Conducting filler(전도성 첨가제), Epoxy composites(에폭시 복합재료)

Nomenclature

GP : graphite power
CCF : continuous carbon fiber
EP : epoxy
CFP : carbon fiber prepreg

1. 서론

고분자전해질 연료전지는 다른 연료전지에 비해 작동 온도가 낮고, 반응 속도가 빠르며, 고전류 밀도 등의 장점을 가지고 있기 때문에 다양한 분야에서 적용되고 있다. 상용화되어 있는 연료전지 부품 중에서 흑연 분리판은 내식성 및 전기 전도성이 우수한 반면, 취성이 강하여 가공 및 제작이 어려울 뿐만 아니라 가스투과도에도 약점이 있다. 이러한 단점을 해결하고자 금속표면 위에 내식성의 재료를 코팅하는 방법, 또는 내식성 소재를 합성하는 연구가 진행되고 있으나 현재까지 뚜렷한 성과는 없는 상태이다. 더욱이 금속 분리판은 전기 전도도 및 기계적 강도가 우수하여 내충격성과 스택의 콤팩트화 측면에서는 유리하지만, 연료전지 작동 환경에서 재료가 부식되는 가

장 큰 문제가 있다. 한편, 복합재료 분리판은 압축성형 및 사출성형을 이용하여 대량 생산이 용이하지만, 금속 분리판과 비교하면 전기적 저항이 크고 기계적 강도가 낮아 분리판의 두께감소에 한계가 있다. 이를 극복하기 위한 방법으로 다양한 탄소 보강재료인 탄소섬유 프리프레그, 탄소나노튜브, 카본블랙 등으로 개발되고 있다. 탄소섬유 프리프레그로 개발된 분리판은 높은 전기 전도도와 기계적 강도를 가지고 있지만¹⁾, 접촉저항이 높고 성형성이 떨어지는 단점을 가지고 있다. 반면, 탄소나노튜브는 상대적으로 성형성과 접촉저항이 좋지만, 뭉침 현상으로 기계적 강도 향상에 한계가 있다²⁾.

본 연구는 복합재료 분리판의 전기 전도도와 기계적 강도를 향상시키고자 연속된 탄소섬유를 흑연/에폭시 복합재료에 적용하였다. 여러 장의 탄소섬유와 흑연의 함량이 복합체의 물성에 어떠

- 1) 전북대학교 수소연료전지공학과
E-mail : jongwk0919@naver.com
Tel : (063)714-3398 Fax : (063)714-3390
- 2) 전북대학교 BIN 융합공학과, 고분자나노공학과
E-mail : jhl@chonbuk.ac.kr
Tel : (063)270-2341 Fax : (063)270-2342

한 영향을 주는지 고찰하였으며, 최적의 성형조건을 파악하고자 한다.

2. 실험

2.1 재료

본 연구에 사용된 재료는 고분자 수지로 고상 분말 에폭시(YSLV-80XY, Thoto Kasei)와 고상 경화제(TAMANOL 758, Arakawa Chemical), 고상 경화촉진제(TTP, Arkema)를 사용하였고, 전도성 첨가제로 흑연(KS-150, Timcal), 탄소섬유(CF1114NON, 한국화이버)를 사용하였다. 탄소섬유는 고인장 강도와 우수한 열, 전기 전도도 및 내식성이 우수해 분리판에 적용하기에 적절하다.

2.2 성형공정

에폭시와 경화제의 비율은 당량에 따라 100:53으로 하고 경화촉진제를 에폭시와 경화제 혼합량 대비 3%를 넣어 주었다. 전도성 첨가제의 비율은 시편 전체 부피의 60~80%를 차지하도록 하였고 탄소섬유는 0~5장 적층하였다. 혼합물은 dry mixing 방법으로 high speed mixer를 사용하여 짧은 시간에 빠르게 혼합하였다. 복합재료 분리판의 성형은 열과 압력을 가하는 압축 성형방법을 이용하였다. 성형온도는 170°C로 고정하였으며 성형압력은 100kg/cm²로 유지하였다.

2.3 특성평가

탄소섬유와 흑연의 함량을 변화시키면서 연료 전지 분리판으로써 요구되는 특성을 평가하였다. 이 중에서 특히 연료전지 조립시 가해지는 압력 및 충격을 견디기 위한 굽힘강도와 전류를 잘 전달시키기 위한 전기적 특성 평가에 초점을 맞추어 진행하였다. 굽힘강도는 3-point 방법으로 인장시험기(STM-10, UNITED)를 사용하여 ASTM D790에 따라 측정하였다. 실험의 일관성을 유지하기 위해 굽힘강도의 측정은 In-plane 전기 전도도를 측정할 때 사용되었던 시편을 사용하였다. 굽힘강도를 측정한 복합체의 파단면을 전자현미경(SEM)으로 관찰하였다.

In-plane 전기 전도도를 위한 시편의 크기는 60x13x3mm로 제작되었으며, 저항은 Keithley 6220 current source와 2182 nano voltmeter를 사용하여 4-probe 방법으로 ASTM D4496에 따라 측정하였다. through-plane 전기 전도도를 위한 시편은 50x50x3mm로 제작되었으며, 저항은 시편과 금으로 도금된 구리전극 사이에 접촉저항을 줄이기 위해 탄소종이를 넣어 압력을 가한 상태에서 측정하였다.(Fig. 1)

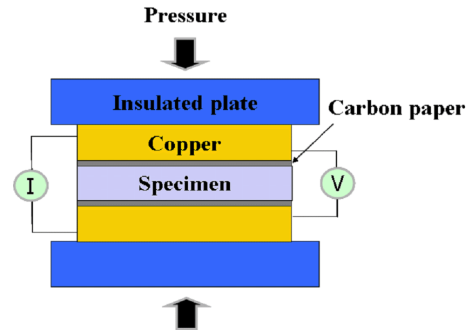


Fig. 1 Experimental setup to measure the through-plane electrical resistance

시편의 through-plane 전기 전도도를 계산하기 위하여, 같은 조건에서 탄소종이 한 장만을 놓고 저항을 측정한 다음 전체의 저항에서 빼줌으로 복합체의 전도도를 계산할 수 있다.(Fig. 2)

$$R = R_{setup2} - 2R_{setup1}$$

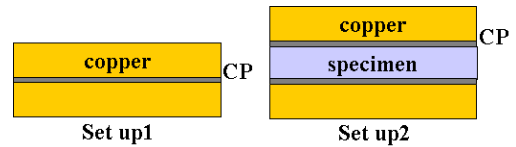


Fig. 2 Calibration setup used for measurement of through-plane electrical conductivity

성형성은 흑연 함량에 따라 성형된 유로를 광학현미경(E600, Nikon)으로 촬영한 다음 image analyzer로 넓이를 계산하였고 실제 몰드의 유로 넓이와 비교하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 굽힘강도

Fig. 3 에서 탄소 충전제의 함량이 증가함에 따라 굽힘강도는 감소하는 경향을 나타낸다. 이는 바인딩하는 에폭시 수지가 상대적으로 줄어들어 탄소재료와 균일한 결합이 이루어지지 않기 때문이다. 중간에 적층한 탄소섬유가 많아질수록 흑연만 첨가한 복합체보다 굽힘강도는 상당히 증가한다. 이는 에폭시가 흑연 입자와 탄소섬유 사이에 균일하게 분포하여 치밀하게 결합이 이루어졌기 때문이다.³⁾ 충전제의 함량이 80 vol.% 인 경우 탄소섬유의 적층 수와 관계없이 낮은 값을 나타낸다.

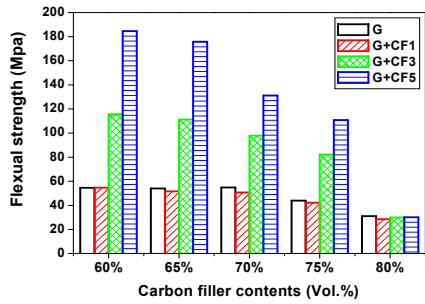


Fig. 3 Flexural strength of GP/CCF/EP composite plates with various carbon filler contents

Fig. 4 에서 흑연 함량에 따른 복합체의 탄소 섬유 과단면을 확인하였다. 흑연의 함량이 증가할수록 바인더가 줄어들어 복합체의 치밀함이 떨어지고 끊어지는 탄소섬유보다 뿔어져 나오는 것이 많아진다. 이것은 바인더와 탄소섬유와의 불완전한 결합을 나타낸다. 이러한 결과는 흑연의 함량이 증가할수록 굽힘강도가 떨어지는 경향성을 설명한다.

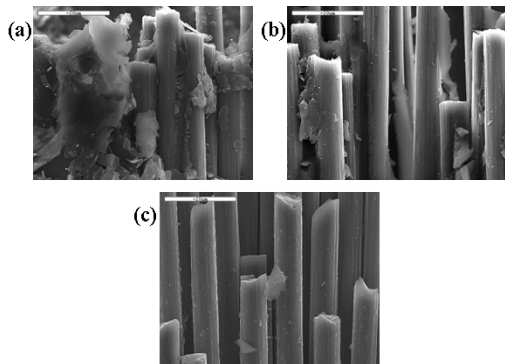


Fig. 4 Scanning electron micrographs of fractured surfaces of GP/CCF3/EP composites for various graphite contents of (a) 60 vol.%, (b) 70 vol.%, (c) 80 vol.%

3.2 전기적 특성

3.1.1 In-plane 전기 전도도

Fig. 5 는 탄소섬유와 흑연의 함량에 따른 복합체의 X-Y축 방향에 전기 전도도를 나타낸 그래프이다. 전체적으로 탄소섬유와 관계없이 흑연의 함량이 75 vol.% 로 증가할 때까지 상승하지만, 그 이상에서는 떨어지는 경향성을 나타낸다. 이는 전기를 전도할 수 있는 흑연의 밀도가 상대적으로 높아지고 입자간의 간격이 조밀해져서 저항이 감소하지만, 한계점을 넘어서면 탄소재료를 바인딩해주는 에폭시 수지가 줄어들어 입자간의

간격이 떨어지게 된다. 따라서 75 vol.% 이상에서는 전도도가 감소하게 된다. 탄소섬유를 적층했을 경우 충전제의 함량이 65 vol.% 이하에서는 탄소섬유가 증가할수록 전도도가 증가하지만 70 vol.% 이상에서는 반대의 경향성을 나타낸다.2)

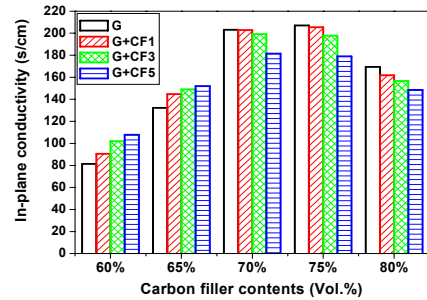


Fig. 5 In-plane electrical conductivity of GP/CCF/EP composite plates with various carbon filler contents

3.1.2 Through-plane 전기 전도도

전자가 분리판을 관통하여 흐르기 때문에 Through-plane 전기 전도도는 중요하다. Fig. 6 은 탄소섬유의 장수에 따른 탄소 충전제의 함량이 70 vol.% 인 복합체의 전도도를 나타내었다. 전도도는 탄소섬유의 층이 증가할수록 감소하는 경향을 나타낸다. X-Y축 방향으로 적층된 탄소섬유가 Z축 방향으로 저항을 증가시킨다. 이는 연료전지에 적용했을 때 전체적인 효율을 감소시키는 요인이 된다.4)

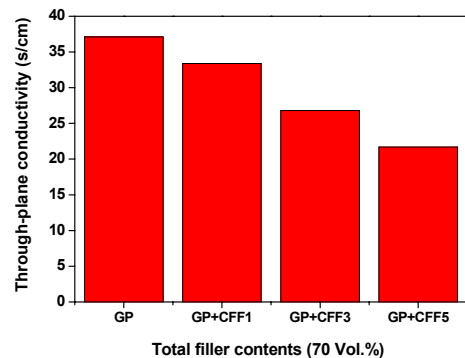


Fig. 6 Through-plane electrical conductivity of GP/CCF/EP composite plates with total filler contents of 70 vol.%

3.2 성형성

분리판은 작고 복잡한 유로를 형성하기 위해 압축성형에서 성형성은 중요하다.5) Fig. 7 는 흑

연 함량에 따라 성형된 유로를 광학현미경으로 촬영한 이미지이다. 흑연 함량이 증가할수록 표면이 거칠어지고 깨지는 부분이 발견된다. Table 1 에서 흑연 함량이 증가할수록 성형성이 떨어지는 경향을 나타내지만, 70 vol.% 범위에서 우수한 성형성을 보여준다.

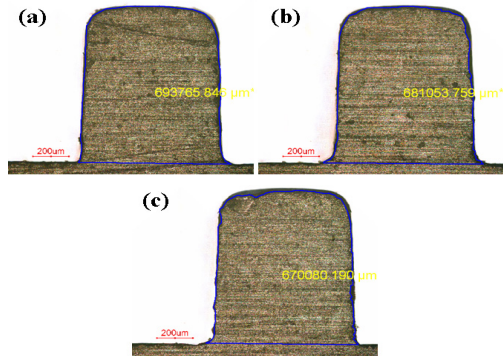


Fig. 4 Moldability of gas flow channel of bipolar plates for various graphite contents of (a) 65 vol.%, (b) 70 vol.%, (c) 75 vol.%

Table 1 실제 몰드의 유로 넓이와 비교한 성형성

	65%	70%	75%
성형성	98.1%	96.7%	94.9%

4. 결론

본 연구는 고분자 전해질 연료전지 분리판으로 개발하고자 흑연/에폭시 복합재료에 연속된 탄소 섬유를 적층하여 복합체를 제작하였고 탄소 충전제의 함량에 따른 특성을 평가해 보았다.

굽힘강도는 탄소섬유가 증가할수록 상승하는 경향성을 나타내며, 150 Mpa 이상의 높은 값을 보여준다. In-plane 전기 전도도는 충전제의 함량이 70~75 vol.% 일 때 가장 높았으며, 이 범위에서 탄소섬유는 전도도 향상에 큰 영향을 주지 못한다. Through-plane 전기 전도도는 탄소섬유가 증가할수록 감소하기 때문에, 전도도 향상을 위한 추가적인 연구가 필요하다. 성형성은 흑연의 함량이 70 vol.% 범위에서 우수한 값을 보여준다. 결과를 종합해 본 결과 70 vol.%의 충전제와 3장의 탄소섬유가 최적의 성형조건임을 예측할 수 있다.

후 기

본 연구(결과물)는 교육과학기술부의 국가지정우주 연구실(NSL) 사업(S108A01003210)과 World Class University(WCU) 사업(R31-20029)의 지원으로 수행된 연구결과입니다.

References

- [1] I. U. Hwang, H. N. Yu, S. S. Kim, D. G. Lee, J. D. Suh, S. H. Lee, B. K. Ahn, S. H. Kim, T. W. Lim, 2008, "Bipolar plate made of carbon fiber epoxy composite for polymer electrolyte membrane fuel cell", J. of Power Sources, Vol. 184, p. 90.
- [2] Q. Yin, K. N. Sun, A. J. Li, L. Shao, S. M. Liu, C. Sun, 2007, "Study on carbon nanotube reinforced phenol formaldehyde resin/graphite composite for bipolar plate", J. of Power Sources, Vol. 175, p. 861.
- [3] Priyanka H, Maheshwari, R. B. Mathur, T. L. Dhama, 2007, "Fabrication of high strength and a low weight composite bipolar plate for fuel cell applications", J. of Power Sources, Vol. 173, p. 394.
- [4] Ling Du, Sadhan C. Jana, 2007, "Highly conductive epoxy/graphite composites for bipolar plates in proton exchange membrane fuel cells", J. of Power Sources, Vol. 172, p. 734.
- [5] Jianhua Huang, Donald G. Baird, James E. McGrath, 2005, "Development of fuel cell bipolar plates form graphite filled wet-lay thermoplastic composite materials", J. of Power Sources, Vol. 150, p. 110.