

탄소복합소재 분리판을 이용한 소형 고분자전해질 연료전지 스택 제작 및 성능분석

한춘수[†] · 최만수[†] · 이지정 · 이재영 · 김인태^{**} · 안정철^{***} · 심중표[†] · 이홍기^{*}

우석대학교 수소연료전지 부품응용기술 지역혁신센터, [†]군산대학교 나노화학공학과

^{**}야마구찌대학교 응용화학과, ^{***}한화석유화학 중앙연구소 신소재연구센터

(2009년 10월 25일 접수: 2010년 5월 20일 채택)

Manufacture and Evaluation of Small Size PEMFC Stack Using Carbon Composite Bipolar Plate

C. Han[†], M. Choi[†], I.-T. Kim^{**}, J.-J. Lee, J.-Y. Lee, J.-C. An^{***}, J. Shim[†], and H.-K. Lee^{*}

Regional Innovation Center for Fuel Cell Technology, Woosuk University, Wanju, Jeonbuk 565-701, Korea

[†]Department of Nano & Chemical Engineering, Kunsan National University, Kunsan, Jeonbuk 573-701, Korea

^{**}Department of Applied Chemistry, Yamaguchi University, Ube, Yamaguchi, Japan

^{***}Research & Development Center, Hanwha Chemical, Daejeon 305-345, Korea

(Received October 25, 2009 : Accepted May 20, 2010)

초 록

탄소복합소재 분리판의 연료전지 성능을 시험하기 위해 소형 고분자연료전지 스택을 제작하였으며 연료전지 운전에 따른 성능변화를 측정하여 탄소복합소재 분리판이 연료전지 스택의 성능에 미치는 영향을 조사하였다. 자체 설계한 가스유로로 디자인된 분리판과 MEA를 적층한 스택의 초기 성능과 장시간 운전에 따른 전압 감소를 측정하였다. 또한 장시간 운전 동안 각 셀의 전압 거동도 함께 측정하였으며 비교를 위해 흑연분리판을 이용하여 제작한 스택의 성능도 함께 시험하였다. 스택에서 각 셀의 성능은 단위전지에서의 성능과 유사하게 나타나 분리판과 스택의 구조가 셀의 성능을 충분히 보여줄 만큼 적절히 디자인된 것을 알 수 있었으며, 장시간 운전 동안 전류가 증가함에 따라 스택의 성능 감소도 점차 증가하였으며 두 종류의 스택이 유사한 성능 감소를 보여 자체 제작한 탄소복합소재 분리판이 흑연분리판과 유사한 성능을 보임을 알 수 있었다.

Abstract : Small size polymer electrolyte membrane fuel cell (PEMFC) stacks were prepared using carbon composite and graphite bipolar plates and their performances were evaluated on reactant gas and operating time. In comparison to single cell and stack, it was identified that home-made bipolar plate was well-designed to maximize stack performance as high as that of single cell. During long-term operation, the performances of stacks using two different kinds of bipolar plates were compared. The decrease of performance in both stacks was accelerated with increasing load current. It was observed from stack test that the stack performance using carbon composite bipolar plate was very similar to that using graphite bipolar plate.

Keywords : PEMFC, Stack, Carbon composite, Bipolar plate, Cell performance

*E-mail: hongkil@mail.woosuk.ac.kr

1. 서 론

고분자 전해질 연료전지 (Polymer electrolyte fuel cell, PEMFC)는 여러 가지 장점을 보유하여 미래의 에너지원으로 각광받고 있다. 화석연료가 아닌 청정에너지 원인 수소를 이용하여 발전하는 시스템인 고분자 전해질 연료전지는 공해물질을 유발하지 않고, 기존의 내연기관 보다 높은 발전효율, 낮은 소음, 자유로운 이동성 등의 장점을 가지고 있다. 그러나 사용되는 재료 (촉매, 전해질, 전극재료 등)가 고가이고 높은 기술 장벽으로 인해 상업화가 늦춰지고 있다. 이런 관점에서 고분자 전해질 연료전지에 사용되는 분리판 (bipolar plate)도 몇 가지 해결해야 하는 문제를 안고 있다.

고분자 전해질 연료전지에 사용되는 분리판은 다음의 역할을 담당한다. 연료 (수소), 공기 및 냉각수 (또는 냉각공기)의 통로, 전극으로 반응가스의 원활한 분배, 반응 생성물과 잔류가스의 제거 통로, 연료와 공기의 혼합을 방지하기 위한 셀 간의 분리, 셀 간의 전기적 연결, MEA (Membrane Electrode Assembly) 지지체, 수소와 산소의 전기화학적 반응에 의해 발생한 반응열의 방출 등이다.^{1,2)} 이러한 역할을 담당하면서 분리판은 다음의 요구조건을 만족시켜야 한다. 스택의 부피당 무게당 에너지 효율을 증가시킬 수 있는 가벼운 소재 (light-weight), 스택의 약 50%에 해당하는 가격비중을 낮출 수 있는 저가의 소재 (low-cost),³⁾ 저항인자로 인한 전압강하 발생을 최소화하여 생산전력을 증가시킬 수 있는 고전도성 소재 (high electrical conductivity), 산성 분위기에서 산화-환원반응에 화학적 및 전기화학적 저항성을 가진 소재 (high corrosion resistance), 반응가스인 수소와 산소의 혼합을 방지하는 비다공성 소재 (non-porous material), 그리고 열, 가습, 진동, 충격 등에 우수한 소재 (durable structure) 등이다.⁴⁾ 이러한 요구조건을 상당히 만족하는 소재인 흑연판 (graphite plate)을 현재 고분자 전해질 연료전지의 분리판으로 널리 사용하고 있다. 흑연판은 높은 전기전도성, 낮은 가격, 높은 화학적/전기화학적 안정성 등의 장점을 보유하고 있으나 충격에 약하고 다공성 소재여서 기공을 막기 위해 고분자 물질을 내부에 침투시켜 사용하고 있다.⁵⁾ 저가의 소재인 흑연에도 불구하고 반응가스의 통로인 가스채널을 기계적인 방법으로 가공함으로써 생산단가가 상승하고 생산성이 낮아지는 단점을 내포하고 있다. 이를 보완하기 위해 탄소 분말과 고분자 물질을 혼합하여 분리판으로 제조하는 탄소복합소재 분리판이 대안으로 대두되고 있다.

탄소복합소재 분리판은 탄소분말과 고분자 물질을 섞어 압착 (compression) 또는 사출 (injection molding) 방식을 이용하여 가스채널이 형성된 판 형태로 제조한다. 제작공정이 간단하여 제조단가를 현저히 낮출 수 있으나 기

체투과도, 열전도도, 전기전도도, 기계적 강도, 성형 정도 등의 문제점을 가질 수 있다. 탄소복합소재 분리판의 제조방법은 다양한 종류의 흑연(탄소)분말과 바인더로 적절한 고분자 물질을 선택한 다음 균일하게 혼합하고 이를 열을 이용하여 성형한다. 고분자는 열가소성 수지 및 열경화성 수지 모두 이용할 수 있으며, 열가소성 수지로는 polypropylene, polyethylene, polyvinylidene fluoride 등이 있고, 열경화성 수지로는 phenolic 수지, epoxy 수지, vinyl ester 수지 등을 사용할 수 있다. 열을 이용한 성형방법은 열압착법 (compression molding)과 사출성형법 (injection molding)이 있다.⁶⁻⁹⁾

흑연분말과 고분자를 혼합하여 탄소복합소재 분리판의 제작은 많은 연구자들에 의해 수행되었으며, 현재도 상당히 진행되고 있다. 그러나 분리판 자체의 성형성과 기타 물리적 특성 분석, 나아가 단전지 실험과 같이 기초적인 부분에 머무르고 있어서 고분자 전해질 연료전지 스택에 적용되었을 때 나타나는 성능변화와 문제점 파악에 대해 많은 정보를 제공하지 못하고 있다. 따라서 본 연구의 목적은 탄소복합소재를 이용하여 분리판을 제조하고 분리판 성형에 영향을 미치는 요소 분석하며, 이를 이용한 소형 고분자 전해질 연료전지 스택을 제조하고 성능평가를 통해 제조된 탄소복합소재 분리판의 스택 적용성과 연료전지 운전에 따른 분리판의 영향을 고찰하고자 한다.

2. 실 험

2.1. 분리판 제작

흑연분말 (Carbonix, P-15) (85 wt%)과 고분자 물질로 페놀 노블락 계통의 YDPN-637 (국도화학) (15 wt%), 경화제로는 산무수물계 Me-THPA (3 or 4-methyl-1,2,3,6-tetrahydrophthalic anhydride, 국도화학)을, 촉매는 BDMA (N-phenylmethyl dimethylamine, 국도화학)을 혼합한 후 몰드에 투입하고 110°C에서 1차 경화시킨다. 그리고 180°C에서 1.5시간 동안 2.5ton의 압력하에서 2차 경화시켜 제작하였다. 몰드에는 가스유로와 반응가스 흡출 형성하여 추가적인 기계적 가공 없이 스택제작에 사용하였다. 제작된 분리판은 한 쪽에 반응가스 유로가 반대편에 공기 냉각을 위한 냉각 유로 (cooling line)가 설계되었다. 스택에 사용된 분리판은 동일한 두 개의 분리판을 전도성 접착제를 이용하여 중앙에 cooling line이 위치하도록 접합하여 바깥쪽으로 다른 반응가스 (수소/산소 혹은 수소/공기)가 흐르도록 bipolar 방식의 분리판을 제작하였으며 분리판의 자세한 사진을 Fig. 1에 나타내었다. 반응가스에 대한 유로는 parallel serpentine 방식으로 제작하였으며, 공기냉각을 위한 cooling line은 일자 형태로 반응가스 유로와 직각이 되도록 형성시켰다.

흑연분리판은 기존의 흑연판에 형성된 기공 (5~10%)을



Fig. 1. Pictures of compression-molded carbon composite bipolar plate. Gas channel(left) and cooling line(right).

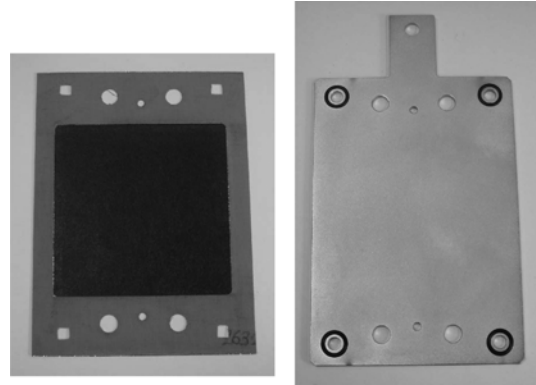


Fig. 2. Pictures of MEA(left) and gold-coated current collector(right).

완전히 제거하기 위해 고분자물질을 함침하여 판 형태로 제작한 후 기계적 가공을 통해 가스 유로와 홈을 제작하였으며 고분자 함침 흑연판은 제조회사 (유림ENG)에서 제공하는 것을 사용하였다. 분리판의 디자인은 탄소복합 분리판과 동일한 형태로 가공하였다.

2. 연료전지 스택 제작

제작된 분리판을 이용하여 소형 고분자 전해질 연료전지 스택을 제작하였다. 사용된 전극전해질 접합체 (Membrane Electrode Assembly, MEA)는 전극면적 50 cm²로 전체 크기가 9 × 12 cm²인 가스켓 일체형 MEA를 Paxitech (France)로부터 구입하였으며, 집전판 (current collector)은

두께 3 mm의 구리판에 금도금을 하여 제작하였고, 엔드 플레이트 (end plate)는 두께 20 mm의 두랄루민을 표면 음극산화 (anodizing)시켜 제작하였다. 자세한 MEA와 집전판의 사진을 Fig. 2에 나타내었다. 각 플레이트의 가스 입구와 출구에는 바이톤 오링을 설치하여 반응가스가 혼합되거나 스택 외부로 새는 것을 방지하였다.

스택의 적층은 제일 하단부에 두랄루민 end plate (20T)와 금도금된 구리 집전판 (3T)을 위치시키고, 그 위에 분리판과 MEA를 교대로 5층 적층하였고, 마지막으로 집전판과 엔드 플레이트를 놓은 다음 볼트를 이용하여 체결하고 체결압력을 증가시키면서 가스 leak를 테스트하였으며, 가스 leak가 없는 시점에서 체결을 종료하였다. Fig. 3에

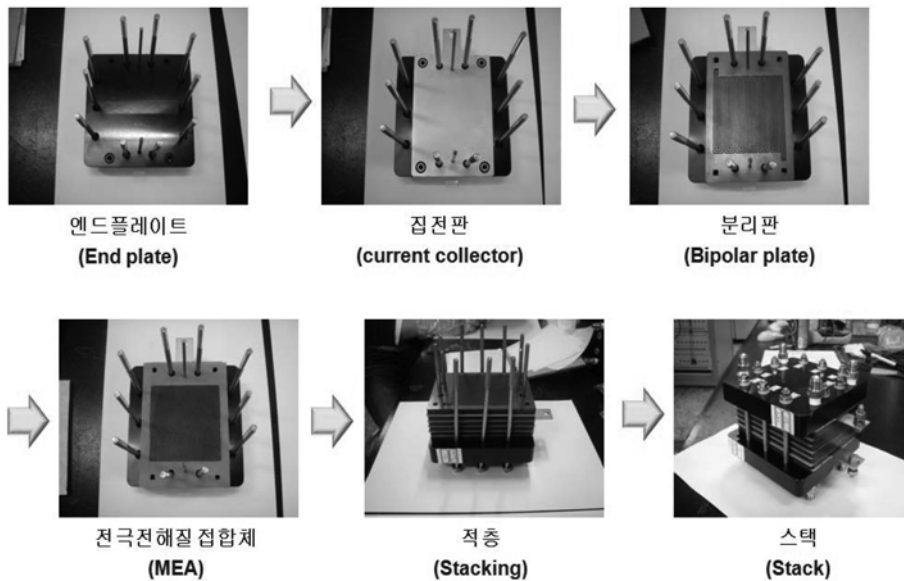


Fig. 3. Process of PEMFC stack manufacturing.

자세한 스택 적층과정을 사진으로 나타내었다. 반응열에 의한 스택의 온도상승을 제어하기 위해 공기냉각방식을 채택하였다. 냉각팬 (fan)을 스택의 위와 아래에 설치하고 팬을 통해 분리판의 중앙에 있는 cooling line으로 차가운 공기를 주입하여 스택을 냉각하였다.

3. 스택의 성능평가

연료전지의 제어 및 성능평가는 자체 제작한 운전장치와 전자부하장치 (electronic load)를 통해 수행되었다. 수소와 산소 또는 공기의 유량은 생산되는 전류에 대해 수소(1.5), 산소(1.5), 공기(3.0)의 화학양론으로 공급하였으며, 운전동안 스택의 온도는 쿨링팬을 이용한 공기냉각방식을 이용하여 60°C로 유지하려고 하였으나 냉각팬의 출력이 원활하지 않아 스택의 온도를 적절히 제어하지 못하였다. 따라서 스택의 온도측정을 위해 분리판의 측면에 온도센서 측정용 구멍 (2 mm)을 설치하고 온도센서를 장착하여 전류부하에 따른 각 분리판의 온도상승을 조사하였으며, 스택의 열화를 방지하기 위해 냉각팬을 작동하면서 동시에 스택(정확히 분리판)의 온도가 70°C 이상으로 상승할 경우 스택 내부의 온도상승을 고려하여 전류의 부하를 중단하였다. 스택의 성능 측정은 electronic load (300 W, 6 V, 50 A, 대길전자)를 이용하여 정전류를 인가하고 일정시간이 경과한 후 전압의 변화가 없을 때 전압을 측정하였고 전류는 0-50 A까지 단계적으로 상승시키면서 인가하였다. 스택의 장기운전은 수소와 산소를 공급하고 시간과 전기부하, 온도제어를 고려하여 10, 20, 30 A에서 4시간씩 운전 후 OCV상태로 일정시간(12시간) 유지하면서 각 전류에 대한 전압을 측정하였으며 이를 매일 반복하여 350시간 이상 운전하였다. Fig. 4는 스택의 설치 및 운전, 각 장치의 명칭을 나타낸 사진이다.

3. 결과 및 고찰

1. 스택의 초기 성능

스택의 성능에 분리판이 주는 영향을 파악하기 위해 탄소복합소재 분리판과 흑연 분리판의 물리적 특성을 분석하였다. 본 논문은 스택의 운전에 따른 성능감소에 영향을 주는 분리판의 주요 인자를 조사하는 것이기에 분리판의 제조과정에 대한 자세한 사항은 본 논문에서는 다루지 않겠다. 분리판의 주요 특성인 전기전도도와 기체투과도는 Table 1에 나타내었으며, 표면형상과 물방울과의 접촉각에 대한 결과는 Fig. 5와 6에 차례로 나타내었다. 전기전도도의 경우, 흑연분리판이 좀더 높은 전기전도도를 보였으며 기체투과도는 탄소복합소재 분리판이 월등히 낮은 값을 나타내었다. 그러나, 두 분리판 모두 미국 DOE에서 제시하는 목표치에는 미치지 못하였다. 두 분리판의 표면 형상은 전자현미경 사진에서 차이를



Fig. 4. Stack operation system(up) and PEMFC stack(down).

Table 1. 분리판의 전기전도도와 기체투과도 비교

	Graphite BP	Composite BP	DOE ^c target
Resistivity ^a (Ωcm)	0.044	0.168	< 0.01
Permeability ^b (cm ³ /cm ² ·sec·atm)	1.2 × 10 ⁻³	3.6 × 10 ⁻⁶	< 2 × 10 ⁻⁶

^aThrough-plane conductivity including contact resistance
^b80°C, 3atm, ^cDepartment of Energy, USA

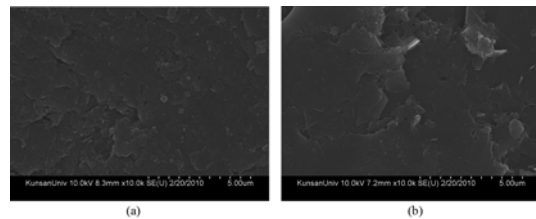


Fig. 5. SEM images of graphite (a) and carbon composite (b) bipolar plate.

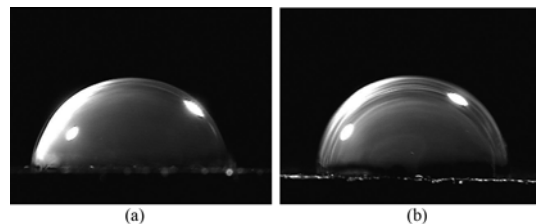


Fig. 6. Pictures of water bubble (<1 mm size) on the surface of graphite (a) and carbon composite (b) bipolar plate.

확인할 수 없을 정도로 유사하였으며, 표면의 소수성 경향도 거의 비슷하게 나타났다. 문헌상에도 epoxy계의 레진이 ~10% 정도 첨가된 탄소복합소재 분리판의 접촉각은 흑연분리판과 유사한 값을 보여주었다.^{8,10,11)}

제작한 스택의 운전에 따른 전압/전류 및 출력, 온도 변화에 대한 결과를 Fig. 7에 나타내었다. 수소/산소의 경우, 분리판의 종류에 상관없이 약 4.5 V의 OCV에서 출발하여 전류가 증가함에 따라 점차 전압이 감소하였고, 30 A (0.6 A/cm²)에서 약 3.4 V, 100 W 정도의 성능을 보였으며, 50 A (1.0 A/cm²)에서 약간의 차이를 보였으며 흑연분리판으로 제작된 스택은 2.91 V, 145 W까지 출력이 상승하였고 탄소복합소재 분리판으로 제작된 스택은 2.58 V, 129 W의 출력을 보였다. 수소/공기로 운전할 경우, 수소/산소 운전보다 낮은 성능을 보였으며 30 A (0.6 A/cm²)에서 약 80W의 출력을 보였다. 스택 온도는 전류가 증가함에 따라 점차 상승하여 50 A에서 80°C에 도달하여 더 이상의 높은 전류에서의 시험을 중단하였다. 냉각팬을 이용한 air cooling 시스템이 스택의 온도를 적절히 제어하지 못하여 이후 시험은 스택의 과열을 방지하기 위해 40 A 미만에서 성능시험을 진행하였다. 연료전지의 성능에 영향을 미치는 분리판의 요소는 전기전도도가 가장 높은

부분을 차지하며 기체투과도는 장기운전에 따른 셀의 열화에 가장 많은 영향을 미치는 것으로 보고되고 있다.¹²⁾ 본 연구에서도 흑연분리판이 탄소복합소재 분리판보다 약간 높은 전기전도를 보이고 있어 스택의 초기 성능에 약간의 차이가 나타나는 것으로 분석된다.

스택의 전체적인 성능은 개별 셀의 성능에 크게 좌우된다. 전체 셀 중 일부 셀의 성능저하가 전체스택의 성능감소에 아주 중요한 영향을 미치기 때문이다. 이러한 이유로 인해 개별 셀의 성능변화를 관찰하여야 하고, 개별 셀의 성능분포를 통해 연료전지 운전에 따른 각 셀의 성능변화와 분리판을 통한 반응가스와 반응생성물의 분배와 제거 여부를 확인할 수 있다. 스택에서 각 셀의 전류에 따른 측정된 전압분포를 Fig. 8에 나타내었다. 탄소복합소재 분리판을 이용한 스택은 cell 3이 가장 낮은 성능을 보였으며, 흑연분리판을 이용한 스택은 cell 5가 제일 낮은 전압을 보였다. 각 셀의 전압은 가장 성능이 나쁜 셀을 제외하고 아주 고른 분포를 보이며, 높은 전류에서 ±0.02 V의 편차를 보였다. 이것은 고른 전압분포를 통해 모든 셀에 반응가스의 분배가 원활히 이루어지고 있음을 추정할 수 있는 증거라고 생각된다. 하지만, 스택의 구조, 분리판의 형태, 가스공급 방향, MEA 성능편차, 등에 따라

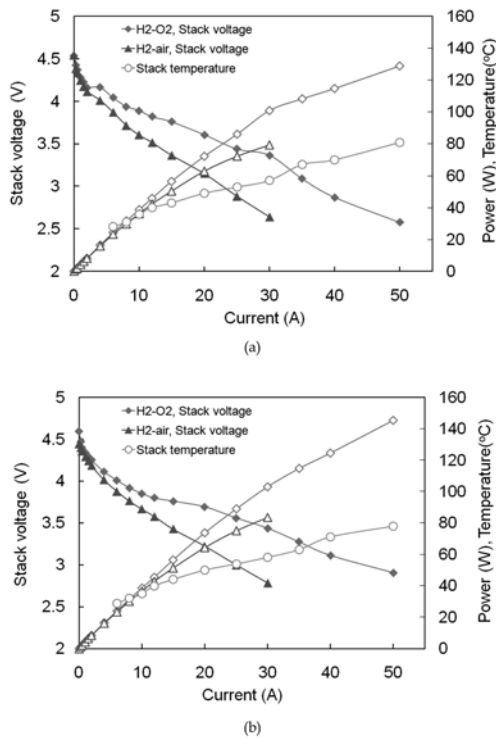


Fig. 7. Performance of PEMFC stack. (a) stack using carbon composite bipolar plate, (b) stack using graphite bipolar plate.

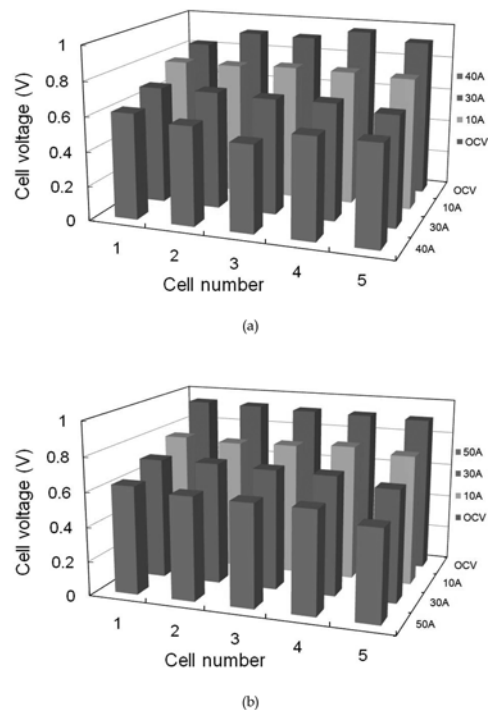


Fig. 8. Voltage distribution of each cell on different current. (a) stack using carbon composite bipolar plate, (b) stack using graphite bipolar plate.

셀간의 전압편차는 존재하는 것으로 이를 줄일 수 있는 스택 및 분리판 설계, MEA 제작 등이 이루어져야 할 것이다.¹³⁾

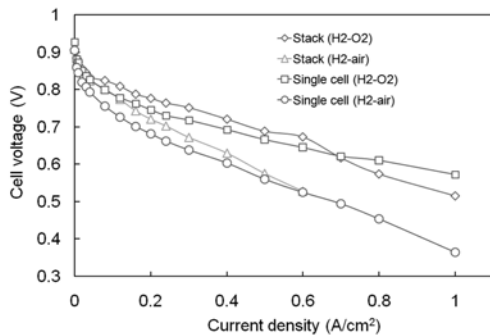
스택에서 단위 셀이 보여주는 성능과 단위전지에서 셀이 나타내는 성능을 비교하여 스택의 가스분배, 체결 등 종합적인 스택의 성능을 추정할 수 있다. 스택 전체에서 나타내는 성능을 단위면적당 전류밀도로 환산하여 단위전지의 성능과 비교한 것을 Fig. 9에 나타내었다. 약간의 차이는 있으나 탄소복합소재 분리판을 사용하거나 흑연분리판을 사용하거나 스택에서의 단위 셀의 성능이 단위전지에서 셀 성능보다 약간 높은 경향을 보였다. 이는 스택 성능 시험을 수행할 때, 전체적으로 스택의 온도가 상승하고 이로 인해 운전온도가 단위전지 시험 (별도의 가열장치 없이 시험)에서보다 약간 높은 온도에서 시험이 진행된 결과가 일부 반영되었을 가능성이 있다. 이를 감안하여 보더라도 두 시스템의 성능 비교를 통해 스택에 사용된 분리판이 원활한 반응가스의 공급과 생성물인 물의 제거, MEA의 접촉 등 셀을 적층하여도 단위전지와 동일한 조건을 유지할 수 있도록 고안되었음을 의미한다. 이러한 비교에서도 위에서 밝힌 결과와 유사하게 흑연분리판으

로 제작된 스택과 탄소복합소재 분리판으로 제작된 스택은 유사한 성능을 보였으며 자세하게는 흑연분리판 쪽이 약간 높은 성능을 보였다.

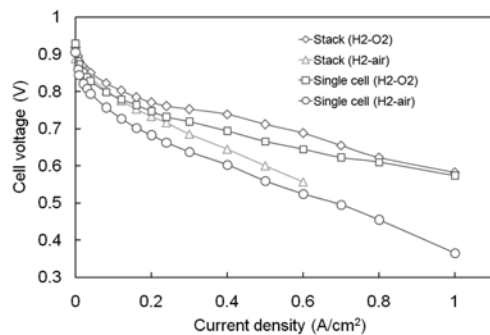
2. 스택 장기운전 및 성능분석

연료전지는 초기 성능보다 얼마나 장시간 초기의 성능을 유지하는지가 더욱 중요한 요소이다. 동일한 전극과 전해질로 스택을 제작할 때, 사용된 분리판이 연료전지의 장기운전 성능에 영향을 주는지를 실험하였다. 장기운전 시험 방법은 앞서의 실험방법에서 기술한 바와 같이 OCV, 10 A, 20 A, 30 A에서 일정시간 운전하면서 시간에 따른 각 셀의 전압변화를 측정하였으며 이를 Fig. 10에 나타내었다. OCV 상태에서는 두 스택 모두 운전시간에 따른 변화가 거의 없으나, 운전시간과 전류가 증가할수록 전압이 점차 감소하는 것을 확인하였다. 장기운전시험은 운전 여건과 여러 가지 사정을 고려하여 흑연분리판 스택의 경우 370시간 (load 운전 약 140시간), 탄소복합소재 분리판 스택의 경우 510시간 (load 운전 약 180시간)에서 시험을 중지하였다.

Fig. 11에는 전류에 따른 스택의 시간당 전압강하 거동

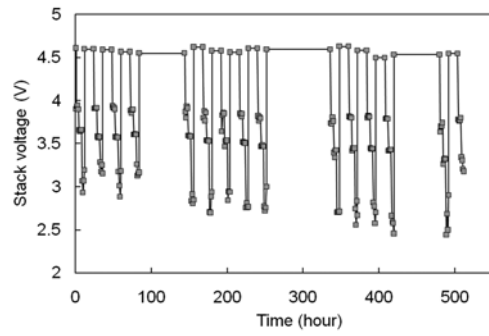


(a)

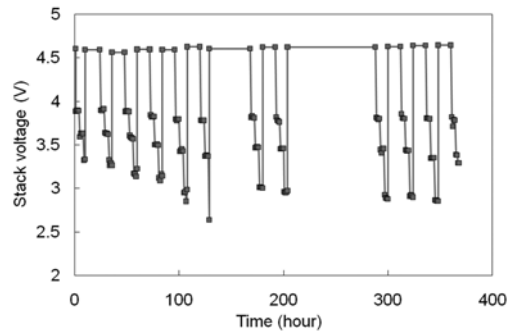


(b)

Fig. 9. Comparison to single cell and stack. (a) stack using carbon composite bipolar plate, (b) stack using graphite bipolar plate.



(a)



(b)

Fig. 10. Voltage variation of stack on operation time and current. (a) stack using carbon composite bipolar plate, (b) stack using graphite bipolar plate.

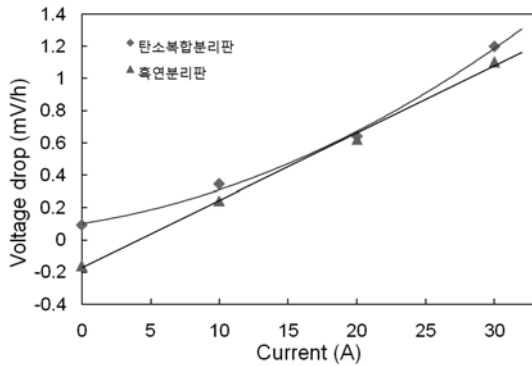


Fig. 11. Voltage drop of stack on time as a function of current.

을 나타내었다. 흑연분리판 스택의 경우, 운전시간이 증가함에 따라 OCV는 점차 증가하여 전압강하 값이 음의 값을 나타내었고 전류에 따른 전압강하는 직선적인 경향을 나타내었다. 30A에서는 시간당 약 1.1mV의 높은 전압강하를 보여주었다. 탄소복합소재 분리판 스택은 이와는 다른 경향을 보여주었는데 전류가 증가함에 따라 전압강하의 크기도 점차 증가하였으며 흑연분리판 스택보다 다소 높은 전압 강하를 보여주었다. 30A에서 전압강하 값은 시간당 1.2mV로서 값의 차이는 그리 크지 않으나 전압강하가 증가하는 경향이 흑연분리판 스택보다 좀 더 강하였다.

30A에서 운전시간에 따른 스택 내의 각 셀의 전압 거동을 Fig. 12에 나타내었다. 그림에서 나타낸 각 셀의 전압 거동은 두 종류의 스택이 전혀 다른 양상을 보였다. 탄소복합소재 분리판 스택의 각 셀의 전압은 운전시간이 증가함에 따라 점차 감소하였으며 전압은 0.7V에서 0.3V 까지 상당히 많이 분산된 전압 거동을 보였다. 그러나 흑연분리판 스택의 각 셀의 전압은 cell 5를 제외하고 0.1V의 범위 안에서 상당히 고른 분포를 보여주면서 운전시간에 따라 점차 감소하는 경향을 보였다. 두 스택의 운전시간에 따른 전압 감소는 동일하게 일어나는 것으로 추측되며 단지 전압의 분포가 다른 양상을 보임을 알 수 있었다. 두 스택 모두 특정 셀이 다른 셀에 비해 높은 전압 감소를 보였으며 이러한 셀이 전체 스택의 성능감소를 가속시키는 것으로 추정한다. 흑연분리판 스택의 경우 cell 5가 가장 높은 성능감소를 보였는데 이 셀의 위치는 스택에서 가장자리에 설치되었으며, 탄소복합소재 분리판 스택의 경우 cell 3과 2가 가장 높은 성능 감소를 보였는데 두 셀은 스택의 내부에 위치하는 셀이다. 이로서 스택 내에서 셀의 위치에 따라 셀의 성능이 좌우된다고 단정 지을 수 없을 것이며 이를 통해 스택의 구조에 의한 성능저하보다는 셀 자체의 성능저하가 주된 원인일 것으로 추정된다. 셀의 성능감소 원인은 장기운전에 따른 촉

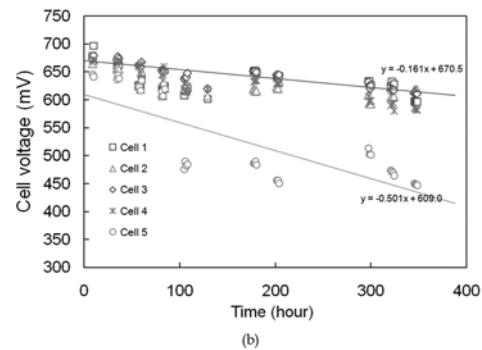
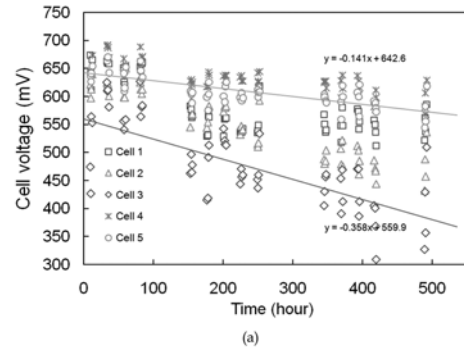


Fig. 12. Voltage decrease of each cell at 30A as a function of operation time. (a) stack using carbon composite bipolar plate, (b) stack using graphite bipolar plate.

매의 응집, 완벽하지 않은 밀봉으로 반응가스의 혼합에 따른 촉매 열화, 과도한 체결압력으로 인한 전극 및 기체확산층의 손상, MEA의 제조 불량 등으로 가정할 수 있다. 스택의 장기운전에 의한 MEA의 성능저하를 확인하기 위해 탄소복합소재 분리판으로 제작한 스택을 장기운전 후 해체하여 그 중 두 셀을 분리하여 단위전지 시험을 수행하였으며 이 결과를 Fig. 13에 나타내었다. Cell 1의

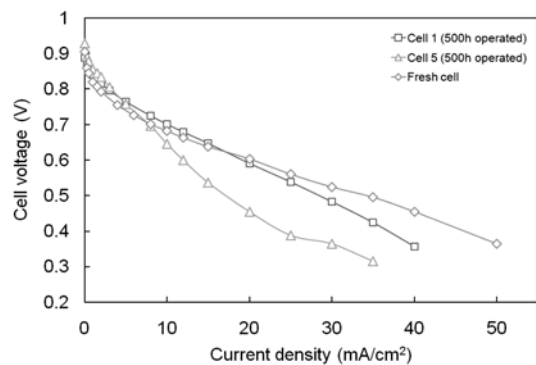


Fig. 13. Performance of single cell before and after long-term operation.

경우 fresh cell과 비교해서 다소의 성능 감소를 보인 반면, cell 5는 뚜렷한 성능감소를 보였다. 장기운전 전과 후에 대한 MEA의 단위전지 시험을 통해 500시간 정도의 운전 (load 운전은 약 180시간)에서 각 셀이 다소의 성능감소를 보였는데 이는 높은 전류(30 A, 0.6 A/cm²)로 인해 셀의 열화가 진행하였기 때문으로 추정된다. 장기 운전에 따라 성능이 서서히 감소하는 가장 큰 원인은 촉매가 여러 가지 영향으로 인해 응집하여 비표면적이 감소하거나 담체로부터 탈리하여 촉매능력을 상실하는 것이다.^{14,15} OCV 상태에서 운전은 담체인 탄소의 부식을 야기하여 촉매 입자의 탈리를 가속화시킬 수 있다. 문헌 상에 나온 결과를 바탕으로 본 연구에서 500시간의 운전 에 따른 성능 감소 원인은 분리판의 여러 요인에 따른 저하로 판단하기 어려우며 스택 운전 방법에 의한 MEA의 자체 열화로 분석된다.

4. 결 론

탄소복합소재를 이용하여 분리판을 제작하였으며 이를 이용하여 소형 고분자전해질 연료전지 스택 제작하고 운전 성능을 평가 분석하였다. 비교를 위해 흑연분리판으로 동일한 크기의 스택을 함께 제작하였다. 수소/산소의 경우, 분리판의 종류에 상관없이 약 4.5 V의 OCV에서 출발하여 전류가 증가함에 따라 점차 전압이 감소하였고, 30 A (0.6 A/cm²)에서 약 3.4 V, 100 W 정도의 성능을 보였으며, 50 A (1.0 A/cm²)에서 약간의 차이를 보였으며 흑연분리판으로 제작된 스택은 2.91 V, 145 W까지 출력이 상승하였고 탄소복합소재 분리판으로 제작된 스택은 2.58 V, 129 W의 출력을 보였다. 각 셀의 전압은 비교적 고른 분포를 보였으며, 전류가 증가함에 따라 약간의 편차를 보였으며 스택을 구성하는 각 셀의 성능은 단위전지와 비교하여도 거의 변화가 없거나 더 우수한 결과를 보임으로서 제작된 분리판이 스택을 적층하여도 단위전지와 동일한 조건을 유지하도록 설계되었음을 입증할 수 있었다. 운전시간이 증가함에 따라 스택의 성능감소가 나타났는데 이는 특정 셀의 현저한 성능감소가 주된 원인이며 이를 제외한 셀은 일정한 전압을 유지하였다. 스택의 성능 감소에 대한 주된 원인은 스택의 구조에 의한 것보다는 셀의 열화에 따른 것으로 추정되며, 이러한 열화의 원인이 스택의 구조보다는 고전류에 따른 셀 자체의 열화로 추측된다.

감사의 글

본 논문은 지식경제부의 지역혁신센터사업과 2009학년도 우석대학교 교내학술연구비 지원에 의하여 연구되었음.

참고문헌

1. E. Cho and I.-H. Oh, 'Current R&D issues on bipolar plates of PEMFC', *Polym. Sci. Tech.*, **15**, 612 (2004).
2. V. Metha and J.S. Cooper, 'Review and analysis of PEM fuel cell design and manufacturing', *J. Power Sources*, **114**, 32 (2003).
3. I. Bar-On, R. Kirchain, and R. Roth, 'Technical cost analysis for PEM fuel cells', *J. Power Sources*, **109**, 71 (2002).
4. T.-H. Yang, "Preparation and Commercialization of Bipolar Plate", Seminar, Fuel Cell Core Technology Center, 2006.
5. Y.-M. Koo, "Preparation and Evaluation of Fuel Cell Bipolar Plate", Seminar, Fuel Cell Core Technology Center, 2009.
6. E.A. Cho, U.-S. Jeon, H.Y. Ha, S.-A. Hong, and I.-H. Oh, 'Characteristics of composite bipolar plates for polymer electrolyte membrane fuel cells', *J. Power Sources*, **125**, 178 (2004).
7. S.I. Heo, K.-S. Oh, J.-H. Jang, Y.-C. Yang, and K.-S. Han, 'A study on precuring condition of the 2-step manufacturing method for PEMFC composite bipolar plates', *J. Kor. Soc. Comp. Mater.*, **20**, 10 (2007).
8. U.-S. Jeon, E.A. Cho, H.-Y. Ha, S.-A. Hong, and I.-H. Oh, 'Development of composite bipolar plates for PEM fuel cells', *Fuel Cell Symp.* p283, July, 2003, Korea.
9. H. Kang, I. Han, and C. Lim, 'Development of composite bipolar plate for PEMFC', *J. Kor. Soc. New & Renew. Energy*, **3**, 3 (2007).
10. H.-S. Lee, S.-H. Ahn, U.-S. Jeon, S.-Y. Ahn, and B.-K. Ahn, 'Evaluation of mechanical and electrical properties of bipolar plate made of fiber-reinforced composites for PEM fuel cell', *Trans. KSAE*, **14**, 39 (2006).
11. K.-J. Kim, Y. Yun, and Y. Jeon, 'The effect of contact resistance and electric conductivity on PEMFC performance', *Proc. Kor. Soc. New & Renew. Energy*, p133 (2007).
12. H.-J. Hwang, T.-H. Yang, Y.-G. Yoon, W.-Y. Lee, Y.-G. Shul, and C.-S. Kim, 'The performance evaluation of the separator for PEMFCs', *Proc. Kor. Soc. New & Renew. Energy*, p288 (2005).
13. W. Choi, Y. Kim, S. Yu, Y. Lee, D. Hong, and K. Ahn, 'An Experimental Study of Short Stack on the Performance of the Proton Exchange Membrane Fuel Cell for the Residential Power generation', *Proc. Kor. Soc. New & Renew. Energy*, p21 (2008).
14. Y. Hong, J. Oh, H. Oh, and H. Kim, 'Investigation of Fuel Cell Catalyst Degradation using Electrochemical analysis', *Proc. Kor. Soc. New & Renew. Energy*, p208 (2007).
15. J.-W. Lee, J.-D. Kim, and D.-R. Park, 'Characteristics of 5 kW class proton-exchange-membrane fuel cell (PEMFC) stack according to the long-term operation', *J. Kor. Ins. Gas*, **11**, 40 (2007).