

## 고분자 전해질 연료전지 금속분리판 316L 스테인리스강의 부식거동 및 기체확산층(GDL)과의 계면접촉저항 측정

오 인 환·이 재 봉<sup>†</sup>

국민대학교 공과대학 신소재 공학부, 136-702 서울시 성북구 정릉동 861-1  
(2010년 6월 1일 접수, 2010년 6월 25일 수정, 2010년 6월 28일 채택)

### Corrosion Behaviors of 316L Stainless Steel Bipolar Plate of PEMFC and Measurements of Interfacial Contact Resistance(ICR) between Gas Diffusion Layer(GDL) and Bipolar Plate

In-Hwan Oh and Jae-Bong Lee<sup>†</sup>

School of Advanced Materials Engineering, Kookmin University,  
861-1 Jeongneung-dong, Seongbuk-gu, Seoul 136-702, Republic of Korea  
(Received June 1, 2010; Revised June 25, 2010; Accepted June 28, 2010)

The corrosion behaviors of 316L stainless steel were investigated in simulated anodic and cathodic environments for proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) by using electrochemical measurement techniques. Interfacial contact resistance(ICR) between the stainless steel and gas diffusion layer(GDL) was also measured. The possibility of 316L was evaluated as a substitute material for the graphite bipolar plate of PEMFC. The value of ICR decreased with an increase in compaction stress(20 N/cm<sup>2</sup>~220 N/cm<sup>2</sup>) showing the higher values than the required value in PEMFC condition. Although 316L was spontaneously passivated in simulated cathodic environment, its passive state was unstable in simulated anodic environment. Potentiostatic and electrochemical impedance spectroscopy (EIS) measurement results showed that the corrosion resistance in cathodic condition was higher and more stable than that in anodic condition. Field emission scanning electron microscopy (FE-SEM), and inductively coupled plasma(ICP) were used to analyze the surface morphology and the metal ion concentration in electrolytes.

**Keywords** : PEMFC, bipolar plate, stainless steel, interfacial contact resistance

## 1. 서 론

연료전지는 친환경적이고 발전효율이 높은 청정에너지원로서 석유자원의 고갈과 환경 문제를 해결할 차세대 기술이다. 특히 고분자전해질 연료전지(PEMFC, Polymer-electrolyte membrane fuel cell)는 다른 연료전지에 비해 작동 온도가 낮고, 전류밀도 및 출력밀도가 높으며, 시동시간이 짧은 동시에 부하변화에 대한 응답특성이 빠른 이점을 가지고 있어 현재 연료전지 자동차, 가정용 발전 및 휴대기기용 전원으로 집중적으로 연구개발이 진행되고 있다.<sup>1)</sup>

이러한 PEMFC의 스택(stack)은 확산층, 전해질, 분리판, 촉매 등으로 구성된 단위 셀(cell) 이 겹겹이 쌓여 있는 형태로 구성되어 있는데 PEMFC의 상용화를 위해서는 전체 스택가격의 50% 정도를 차지하는 분리판의 가격을 낮추는 것이 필요하다.

분리판은 크게 전도/통전, 배출, 분리 등의 기본적인 역할을 수행한다. 이러한 역할에 따라 분리판이 가져야 할 첫 번째 사항은 연료전지 작동 시 스택을 이루고 있는 각 전극에서 전극반응으로 생성/소모되는 전자가 통과하는 전기적 경로의 역할을 하는 것 이고 이를 위하여 분리판과 가스확산층(GDL) 간의 전기전도도가 양호해야한다는 것이다. 분리판 소재의 전기저항은 연료전지 성능에 밀접하게 영향을 미치므로 사용되는 분리판 소재의 계면접촉저항은 허용 수준 이하로 낮아야 한다. 둘째 사항은, 전극반응에 참여하는 반응가스(수소, 공기)를 공급하고 공기극에서 생성된 물을 외부로 배출하는 통로 역할을 수행하기 때문에 복잡한 유로형을 잘 가공할 수 있어야 한다. 세 번째 사항은 수소극과 공기극에 공급되는 반응가스의 혼합을 방지하는 역할을 하므로 가스투과율이 낮아야 한다. 네 번째 사항은 연료전지 운전 시 계속적인 전극반응에 의한 내부 온도가 상승하므로 높은 열전도 특성을 가져야 한다. 마지막 사항으로 PEMFC에서 Nafion 전해질 막이 술폰산기(-SO<sub>3</sub>H)를 가지고 있고

<sup>†</sup> Corresponding author: leejb@kookmin.ac.kr

전해질 막의 퇴화로 인한 소량의 F<sup>-</sup>이온의 영향으로 부식환경이 조성되기 때문에 내식성이 좋아야 한다는 것이다. Table 1은 이러한 분리판의 기능적 요구사항을 바탕으로 미국에너지부(Department of Energy, DOE)이 정한 2010년 목표 값을 나타낸다.<sup>2)</sup>

분리판 소재는 크게 그라파이트계, 복합재료계, 금속계로 나눌 수 있는데 일반적으로 널리 사용되고 있는 그라파이트계는 전기전도도와 내식성이 우수하지만 기계적 성질이 취약하고 제조단가가 높은 단점이 있으며 복합재료도 우수한 전기전도도와 내식성에 비해 제조단가가 높아, 가격 면에서 유리하고 기계적 성질과 가공성이 좋으며 전기전도성이 우수한 금속계 분리판재료의 개발이 매우 필요하다.<sup>3)</sup>

금속계 분리판 소재로는 가공성, 가격, 기계적 강도, 전기전도도와 부식저항성 등이 우수한 스테인리스강이 연료전지 분리판의 가능성을 가지고 많은 연구가 행해지고 있다.<sup>4)</sup> 그러나 스테인리스강은 표면에 형성된 부동태 피막으로 인한 계면접촉저항 증가와 연료전지환경에서의 부식에 대한 낮은 저항성 때문에 분리판으로 사용하기에는 아직 잠재적인 어려움이 있다. 또한 분리판의 부식생성물은 촉매를 오염시키고 연료전지의 효율을 감소시킨다. 이와 같은 단점을 해결하기 위하여 Wang 등<sup>5)~11)</sup>은 스테인리스강 표면에 다양한 물질을 코팅하거나, Kim 등은<sup>12)</sup> 새로운 합금을 개발하고 Tian 등<sup>13)</sup>은 스테인리스강 표면에 질화처리를 함으로써 금속분리판의 기능을 개선하려 하였다. 따라서 이러한 다양한 개선방법을 적용하기 위해서는 우선 모재가 되는 스테인리스강의 종별 연료전지환경에서의 특성을 자세히 파악해야 한다.

일반적으로 오스테나이트계 스테인리스강이 페라이트계와 마르텐사이트계 스테인리스강 보다 더 나은 부식저항성을 가진다고 알려져 있으므로<sup>6)</sup> 본 연구에서는 오스테나이트계 316L 스테인리스강을 시험시편으로 사용하였고 PEMFC의 양극과 음극환경에서의 부식거동과 전기전도도

를 각각 측정함으로써 PEMFC의 분리판이 가져야할 2010년 DOE의 요구조건과 비교하여 316L 스테인리스강의 금속분리판으로서의 가능성을 평가하고자 한다.

## 2. 실험방법

실험에 사용된 316L 스테인리스강 시편의 화학조성은 Table 2에 나타내었다. 시편의 크기는 지름 16 mm, 두께 3 mm의 원판 형태로 가공 하였으며 전기화학 실험을 위하여 표면은 #320, #600, #800, #1200 grit 까지 SiC 연마지로 차례로 연마 후 다시 1 μm 알루미나 분말을 이용하여 습식 연마한 다음 증류수로 세척하고 아세톤으로 1분간 초음파 세척을 하였다. 모든 전기화학 시험에서 시편의 노출면적은 0.7 cm<sup>2</sup>으로 하였고 동전위분극시험 및 교류임피던스 시험에서는 시편의 면적을 고려하였고 정전위분극시험은 시간에 따른 전류의 변화를 측정하였다. 계면접촉저항(Interfacial contact resistance, ICR) 측정에 사용된 시편은 연마하지 않고 공기 중에 노출시켜 자연스럽게 형성된 부동태피막을 가진 시편을 사용하였다.

시편의 PEMFC 작동환경에서의 부식거동을 관찰하기 위해 동전위 분극 시험, 정전위 분극 시험 및 교류임피던스 시험을 실시하였다. 모든 전기화학 시험은 3전극 시스템을 사용하였고 연료전지 작동환경을 모사하기 위하여 70 °C에서 1 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>에 2 ppm F<sup>-</sup>를 첨가한 수용액을 사용하였다. 그리고 연료전지의 양극(cathode) 환경을 모사하기 위해 공기를 실험 시작 전 그리고 실험 동안에 충분히 용액에 포화시켰으며 음극(anode) 환경을 모사하기 위해서 수소를 포화시켰다. 이러한 모사시험용액은 PEMFC에서 Nafion 전해질막이 술폰산기(-SO<sub>3</sub>H)를 가지고 있으므로 70 °C, 100% 가습조건에서 Nafion 전해질막의 pH가 3정도인 것과 전해질 막의 퇴화로 인한 소량의 F<sup>-</sup>이온이 존재할 경우를 함께 고려한 것이다.<sup>1)-2)</sup> 상대전극으로는 백금전극을 사용

**Table 1. The required chemical and physical properties for bipolar plate of PEMFC<sup>2)</sup>**

Properties	Required values
H <sub>2</sub> gas permeability	<2×10 <sup>-6</sup> cm <sup>3</sup> cm <sup>-2</sup> .sec in 60~90 °C, 3atm, (<0.1mAcm <sup>-2</sup> )
Corrosion resistance	<1μAcm <sup>-2</sup> (0.1V, H <sub>2</sub> anode) (0.6V, Air cathode) in 60~90 °C, pH3, 1mM~1M H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> /2ppm F <sup>-</sup> solution
Interfacial contact resistivity	<10mΩcm <sup>2</sup> in 100~150Ncm <sup>-2</sup>
Cost	<10 US\$kW <sup>-1</sup> (500,000 stack/year)

**Table 2. Chemical composition of 316L stainless steel (wt%)**

C	Mn	P	S	Si	Cr	Ni	Co	Cu	Mo	N	Sn	Nb
0.014	1.70	0.028	0.001	0.35	16.30	10.13	0.26	0.43	2.09	0.04	0.009	0.014

하였고 기준전극은 Ag/AgCl 전극을 사용하였으나 전위는 Ag/AgCl전극 전위에 상온보다 높은 온도(70 °C)에서의 전위 차이까지 고려하여 40 mV를 더해 포화칼로멜 전극전위 ( $V_{SCE}$ ) 로 변환하여 나타내었다. 동전위 분극 시험에서 인가 전위의 범위는 개방전위에서 200 mV 아래 전위에서 시작하여 1.2  $V_{SCE}$ 까지 분극하였고 주사속도는 0.5 mV/sec로 하였다. 정전위 분극 시험은 PEMFC의 양극 작동 전위인 0.6  $V_{SCE}$  와 음극 작동 전위인  $-0.1 V_{SCE}$  에서 72시간 동안 실시하였으며 시간에 따른 전류값의 변화를 관찰하였고 실험 후 금속의 이온 용출현상을 알아보기 위해 수용액의 일부를 채취하여 inductively coupled plasma(ICP)분석을 하였다. 침지시간에 따른 시편의 부식저항을 측정하기 위하여 수용액에서 시편을 각각 0, 2, 24, 48, 72시간 동안 침지 후 교류 임피던스시험을 각각 실시하였다. 침지 환경은 연료전지의 양극 환경과 음극 환경을 모사하기 위하여 공기와 수소를 각각 포화시킨 수용액에서 시편에 작동전위인 0.6  $V_{SCE}$ ,  $-0.1 V_{SCE}$ 을 각각 인가하였다. 교류 임피던스시험의 주파수 범위는  $10^{-2} \sim 10^5$  Hz로 하였고 인가전위는 0.6  $V_{SCE}$ 와  $-0.1 V_{SCE}$ 를 각각 인가하였다. 침지 후의 시편 표면의 변화는 FE-SEM으로 관찰하였다.

시편의 연료전지 환경에서의 전기전도도 특성을 평가하기 위하여 PEMFC 스택 내의 환경을 모사해 Gas diffusion layer(GDL 10 series BA)와 시편 사이의 계면접촉저항을 압력을 변화 시키면서 측정하였다. 이 측정 방법은 Wang 등이 실시한 측정방법<sup>3),6),12),14)</sup>과 유사하지만 보다 정확하고 간단한 측정을 위하여 Fig. 1과 같이 계면의 수를 줄이고 전체 저항이 바로 GDL과 시편의 저항  $R_{GDL/STS316L}$ 의 두 배가 되게 측정하였다. 가해진 압력은  $20 N/cm^2 \sim 240 N/cm^2$  까지 변화시켰고 양 끝의 구리판에  $700 mA/cm^2$ 까지의 전류를 인가하여 GDL과 시편사이의 전압강하를 측정 한 뒤 ICR을 계산하였다. 또한, 스택 내 분리판이 받는 압력인  $140 N/cm^2$  에서 시편의 연료전지를 모사한 환경에서 침지

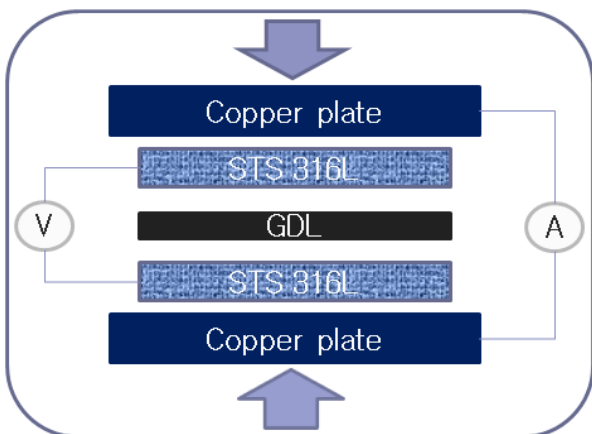


Fig. 1. The schematic setup for ICR.

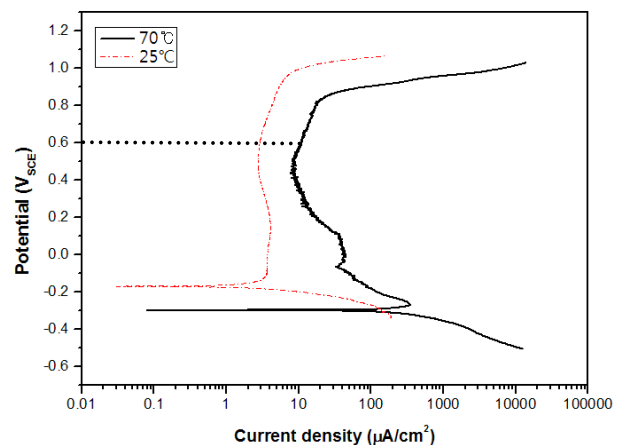
시간(0, 2, 24, 48, 72시간)에 따른 ICR의 변화를 측정하였다.

각 실험에서 얻어진 시편의 부식 거동과 전기전도도 값을 DOE가 제시한 2010년 목표 값에 비교하여 오스테나이트계 316L 스테인리스강의 분리판으로서의 가능성을 평가하였다.

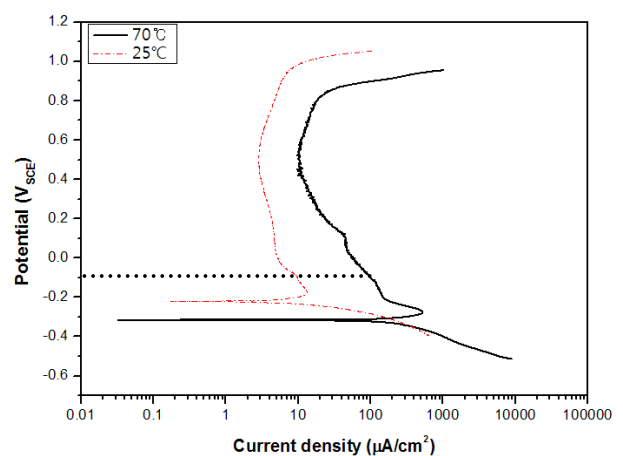
### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 스테인리스강 316L의 연료전지 환경 모사 분위기에서의 부식거동

Fig. 2는 70 °C와 상온에서 1 M  $H_2SO_4 + 2 ppm F^-$  수용액에 공기와 수소를 각각 포화시킨 후 실시한 동전위 분극 곡선을 나타낸다. 연료전지의 양극 환경을 모사한 공기분위기에서의 부식전위가 음극 환경을 모사한 수소분위기에서



(a)



(b)

Fig. 2. Polarization curves of 316L in 1M  $H_2SO_4/2ppm F^-$  aqueous solution at 70°C and 25°C purged with (a) air(cathode) and (b) hydrogen gas(anode). The anodic( $-0.1V_{SCE}$ ) and cathodic ( $0.6V_{SCE}$ ) potentials were applied for the simulated PEMFC application.

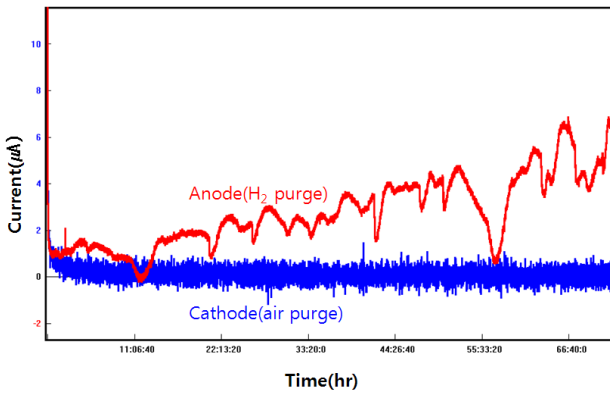
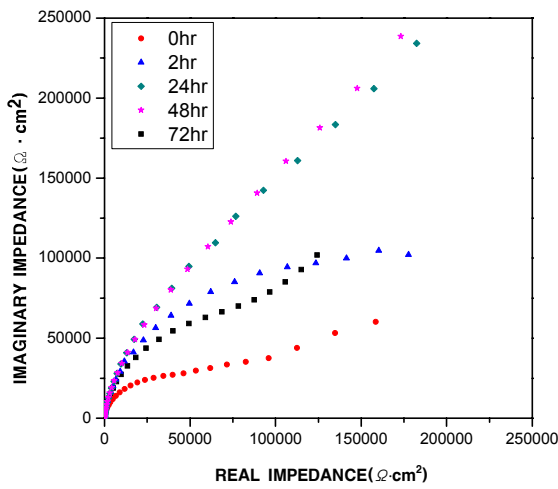
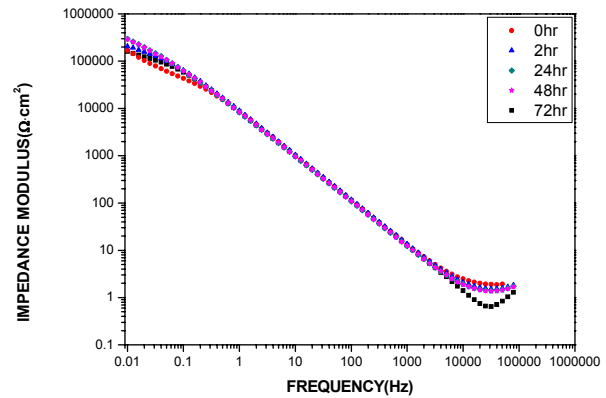


Fig. 3. Plots of current vs. immersion time for 316L potentiostatically polarized in solutions (70°C) at 0.6V<sub>SCE</sub> under air condition and -0.1V<sub>SCE</sub> under H<sub>2</sub> condition, respectively.

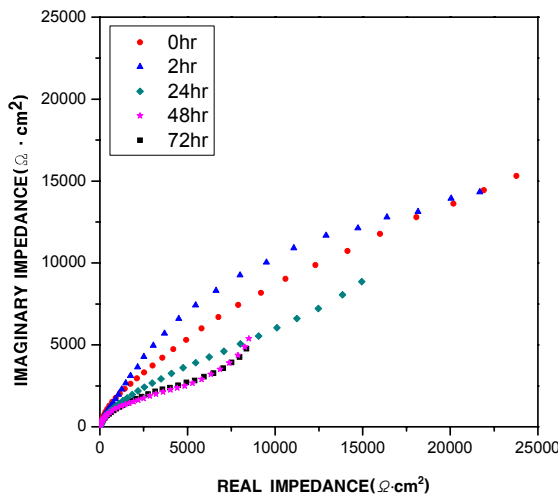
의 부식전위보다 약 20 mV 정도 높았고 임계전류밀도는 수소분위기에서가 공기 분위기에서보다 높았으나 부동태 영역에서부터 부동태피막의 과부동태(transpassive) 영역까지의 분극거동은 양쪽환경에서 거의 비슷하였다. 연료전지의 양극 환경에서의 작동전위인 0.6 V<sub>SCE</sub>에서는 시편이 안정된 부동태구간에 있는 것을 확인 하였다. 음극 환경에서의 작동전위인 -0.1 V<sub>SCE</sub>에서는 안정된 부동태 구간에 있다고 보기 어려워 양극환경에서는 스테인리스강 316L이 안정된 부동태 피막의 형성으로 강한 내식성을 보이더라도 음극환경에서는 안정된 부동태 피막이 형성되지 않아 낮은 내식성을 나타낼 것을 예측할 수 있다. 또한 상온에서의 실험결과와 비교하였을 때 70 °C에서는 양극환경과 음극환경 모두 더 높은 부동태 전류밀도를 보였고 또한 양극환경과 음극



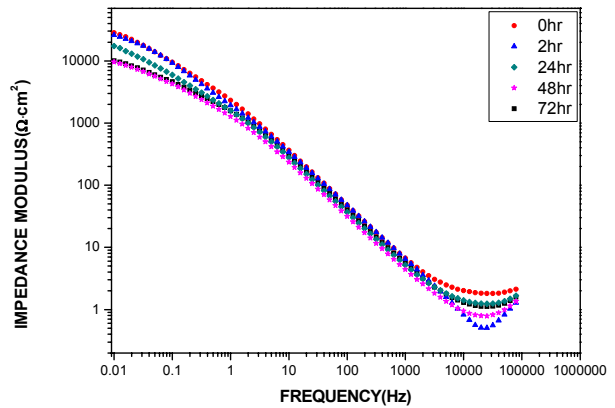
(a)



(b)



(c)



(d)

Fig. 4. Electrochemical impedance spectra for 316L represented by (a) Nyquist and (b) Bode plots in cathodic condition; (c) Nyquist and (d) Bode plots in anodic condition.

환경 모두에서 부식전위가 감소한 것을 볼 수 있다.

Fig. 3은 연료전지의 작동 전위에서 시편의 부식정도와 표면의 부동태 피막의 안정성 여부를 측정하기 위해 양극환경과 음극환경에서 72시간 동안 정전위 분극 시험을 한 결과이다. 정전위 시험 시작 후 양극환경, 음극환경 모두에서 시편 표면의 부동태화가 진행되면서 전류값이 급격히 낮아지다가 각각  $0.8 \mu A$ ,  $1.5 \mu A$ 에서 점차 안정화되는 것을 볼 수 있었다. 양극환경과 음극환경에서의 안정화된 전류값을 시편의 노출면적을 고려한 전류밀도로 환산했을 때 양극환경에서의 전류밀도는  $1.143 \mu Acm^{-2}$ , 음극환경에서의 전류밀도는  $2.14 \mu Acm^{-2}$ 로 DOE의 2010년 목표값( $<1 \mu Acm^{-2}$ )을 초과하였고 시험 초반에는 양극환경, 음극환경 양쪽 모두에서 안정된 전류밀도 값을 나타내었지만 시험시간이 길어질수록 음극환경에서는 불안정한 전류 거동을 나타내었으며 시험 후반에는 최대 전류값이 약  $6 \mu A$ 까지 증가하였다. 이는 양극환경에서의 작동전위인  $0.6 V_{SCE}$ 에서 안정된 전류밀도를 나타내지만 음극환경 작동전위  $-0.1 V_{SCE}$ 에서는 안정된 부동태피막이 형성되지 않아 전류값이 불안정한 거동을 보이는 것으로 판단되며 이 결과는 동전위 분극곡선의 경우와 일치 하였다.

분리판의 PEMFC 작동환경에서의 침지시간에 따른 시편 부식저항의 변화를 좀더 잘 이해하기 위하여 교류 임피던스 시험을 실시하였다. Fig. 4는 침지시간에 따른 양극환경과 음극환경에서의 스테인리스강 316L의 나이퀴스트 도표와 보데 도표이다. 반원의 지름으로 계산되는 전하전달 저항은 시편의 분극저항을 의미하는데 전체적으로 양극환경에서의 분극저항이 음극환경에서의 분극저항보다 큰 값을 가졌다. 그리고 양극환경에서는 침지 후 시편의 분극저항이 전체적으로 증가하는 것을 볼 수 있는데 이는 연료전지의 양극작동전위인  $0.6 V_{SCE}$ 에서 부동태 피막이 안정화 되어 시편의 내식성이 향상된 결과이다. 그러나 침지 48시간까지 계속 증가하던 시편의 분극저항은 72시간 침지 후에는 오히려 48시간 침지한 시편의 분극저항인  $294.2 k\Omega cm^2$  보다 감소한  $154.7 k\Omega cm^2$  이었는데 이는 시간에 따른 피막의 특성이 침지시간이 길어지면서 다소 침지용액에 영향을 받는 것으로 생각된다. 비록 72시간 침지 후 분극저항이 감소했지만 이것은 여전히 매우 높은 값이며 정전위분극선 상에서도 72시간 까지 매우 낮은 전류값을 보이므로 연료전지의 양극환경에서는 비교적 안정된 부동태피막을 형성한다고 할 수 있다. 반면 음극환경에서는 침지시간이 길어지면서 부식저항성이 점차 감소하는 경향을 보이는데 처음 2시간 침지 뒤에는 어느 정도 피막이 형성되면서 부식저항이 약간 상승하지만 동전위 분극 시험과 정전위 분극 시험의 결과에서 확인한 바와 같이 연료전지의 음극작동전위인  $-0.1 V_{SCE}$ 에서는 부동태 피막이 불안정하기 때문에 침지 시간이 길어지면서 부식저항이 낮아지는 것을 알 수 있다.

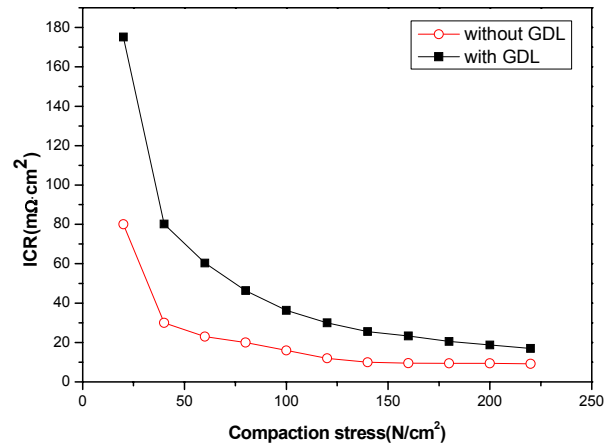


Fig. 5. Effects of the compaction stress on ICR with GDL and without GDL.

### 3.2 스테인리스강 316L과 GDL의 접촉저항(ICR)

Fig. 5는 압력 변화에 따른 GDL과 스테인리스강 316L의 ICR, 그리고 GDL이 없을 때의 ICR 값의 변화를 나타낸다. 전체적으로 GDL이 시편사이에 존재할 때 ICR 값이 높았으며 낮은 압력에서는 비교적 높은 값을 가졌고 압력을 증가시키면 따라 접촉저항이 감소하였다. 그리고 약  $50 m\Omega \cdot cm^2$  아래에서부터는 ICR값의 변화 정도가 크지 않았다.  $20 Ncm^{-2}$ 에서  $220 Ncm^{-2}$ 까지의 압력 범위에서 ICR은  $175 m\Omega \cdot cm^2$ 에서  $17 m\Omega \cdot cm^2$ 의 값을 감소를 나타내었고 연료전지 스택 내에서 분리판이 받는 압력인  $140 Ncm^{-2}$ 에서 ICR은  $25.6 m\Omega \cdot cm^2$ 이었다. 이것은 DOE가 제시한 목표값인  $10 m\Omega \cdot cm^2$ 보다 크며 이는 시편 표면에 형성된 얇은 산화막인 부동태 피막 때문인 것으로 생각된다. 부동태 피막은 내식성을 향상시키는 역할을 하지만 계면의 전기 저항을 높이므로 연료전지의 내부저항을 높여 성능의 저하를 가져온다.<sup>1)~2)</sup>

Fig. 6은 연료전지의 양극환경, 음극환경에서 각각 시편을 0, 2, 24, 48, 72시간 침지한 뒤, 스택에서 분리판이 받는 압력인  $140 Ncm^{-2}$ 에서 침지시간(0, 2, 24, 48, 72시간)에 따른 시편의 ICR을 측정된 결과이다. 침지가 끝난 뒤 시편을 건조시킨 상태에서 ICR시험을 진행하였다. 양극환경에서 침지 한 시편은 침지 후 ICR이 증가하는 경향을 나타내었고 최대  $48.8 m\Omega \cdot cm^2$ 까지 저항이 증가하였다. 시편은 양극환경에서 안정된 부동태 영역에 있기 때문에 침지 후 피막은 안정화 되어 ICR의 증가를 초래하였다. 이와 같은 사실은 H. Wang 등<sup>5)</sup>도 스테인리스강의 산화 피막이 두껍고 안정화 될수록 ICR값이 증가한다는 것을 확인하였다. 침지 72시간 후에는 ICR 값이 약간 감소하는 것을 볼 수 있는데 이는 교류임피던스 시험에서 72시간 침지 후 부동태피막의 특성 변화에 따른 분극저항의 감소가 영향을 끼친 것으로 생각되

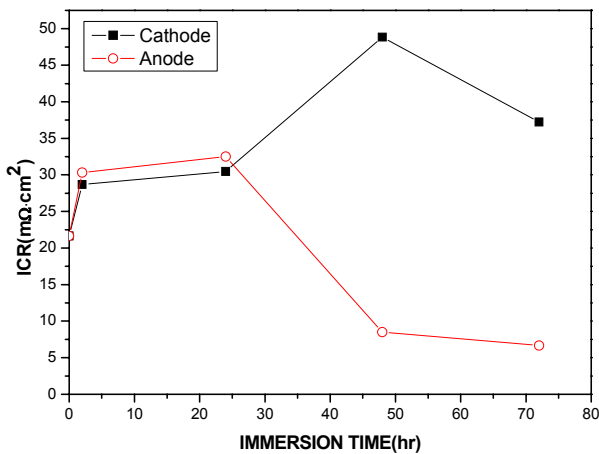


Fig. 6. Effects of the immersion time on ICR under a compaction stress of 140Ncm<sup>-2</sup>

지만 ICR 측정 시 in-situ 연료전지환경이 아닌 공기 중에서 건조된 시편을 사용한 것이 실험결과에 영향을 준 것으로 판단된다.

음극환경에서의 경우 2시간, 24시간 침지한 시편의 ICR은 0시간 침지한 시편의 ICR보다 높은 값을 보였으며 48시간, 72시간 침지한 시편의 ICR은 0시간 침지한 시편의 ICR보다 낮은 값을 나타내었다. 이는 연료전지의 음극환경에서의 침지시간이 길어지게 되면 상대적으로 내부저항을 증가하는 요인인 부동태피막이 불안정하게 되어 부식에 따른 피막의 용해 등으로 인하여 접촉저항이 감소하게 된 것으로 사료된다. 음극환경에서의 정전위분극곡선을 보면 시험초반에는 비교적 안정된부동태피막으로 인해 낮은 전류값을 보이지만 시험후반에는 전류의 거동이 불안정하고 증가하는 것을 볼 수 있다. 이러한 전류의 증가는 불안정한 부동태피막 때문이며 48시간, 72시간 침지한 시편이 0시간 침지한 시편보다 더 낮은 ICR값을 가지는 이유는 공기 중에서 형성된 부동태피막(침지시간 0시간)이 더욱 안정하기 때문이다.

3.3 72시간 정전위 분극 시험 뒤 용액의 ICP분석 결과

금속분리판은 연료전지환경에서 부식으로 인하여 금속이온이 용출되면 전해질 막을 오염시켜 연료전지의 효율성을 감소시키는 문제점을 가지고 있다. Table 3은 이런 문제점을 조사하기 위하여 연료전지의 양극환경, 음극환경 각각의 작동전위인 0.6 V<sub>SCE</sub>, -0.1 V<sub>SCE</sub>에서 각각 72시간 동안 정전위 분극시험을 한 뒤 용액의 금속이온용출량을 알아보기 위해 ICP분석을 한 결과이다. 시편의 내식성을 측정하기 위하여 실시한 여러 전기화학 시험결과에서 예측할 수 있듯이 음극환경에서의 금속이온용출량이 양극환경에서 보다 Fe가 0.32 ppm, Cr이 0.14 ppm 그리고 Ni이 0.098 ppm 만큼 더욱 많았다. 용출된 금속이온의 종류는 Fe, Cr, Ni이

Table 3. Metal ion concentration of the solution after 72hr potentiostatic test in the simulated cathodic and anodic working conditions.

Test condition	Metal ion concentration (ppm)		
	Fe	Cr	Ni
Anodic condition (H <sub>2</sub> purge)	0.68	0.15	0.1
Cathodic condition (air purge)	0.32	0.01	0.002

고 양극환경, 음극환경 모두에서 Fe의 용출량이 가장 많았다. 이는 앞서 실시한 연료전지 환경을 모사한 환경에서의 여러 전기화학적 시험에서 시험에서 보여준 시편의 부식거동과 일치하는 결과로서 양극환경에서는 안정된 부동태 피막의 형성으로 시편의 부식이 방지가 되어 금속이온이 비교적 적게 용출된 반면 음극환경에서는 불안정한 부동태피막의 형성으로 용출된 금속이온이 더 많았다. 일반적으로 금속분리판은 500시간 동안 정전위 시험 뒤 금속이온용출량이 1 ppm을 넘지 않아야 한다고 알려져 있는데 본 실험에서는 양극환경, 음극환경 모두에서 금속분리판으로서 수용할 수 있는 금속이온용출량을 보였다.

3.4 침지시간에 따른 316L 스테인리스강 표면의 FE-SEM 분석결과

연료전지의 양극환경과 음극환경 각각의 작동전위에서 2시간, 72시간 침지 뒤 시편의 표면을 FE-SEM으로 관찰하였다. 양극환경에서는 시편 표면에 안정된 부동태피막의 형성으로 부식으로 인한 표면변화와 침지시간에 따른 표면변화는 거의 나타나지 않았다. 음극환경의 경우는 2시간 침지까지는 양극환경과 마찬가지로 부식으로 인한 표면변화가

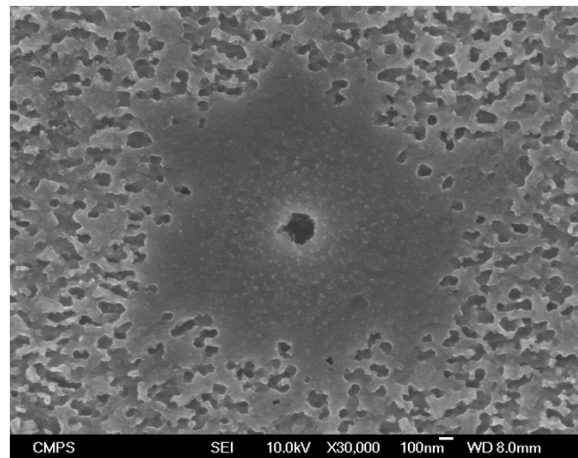


Fig. 7. The enlarged SEM image of pitting-type corrosion on 316L after 72hr immersion in the simulated anodic working condition.

관찰되지 않았지만 72시간 침지 뒤에는 시편표면에서 부식으로 인한 변화가 관찰되었다. 음극환경에서의 인가전위는  $-0.1 V_{SCE}$ 로 공식전위 이하의 환경에서 침지가 행하여졌기 때문에 공식이 발생하지 않고 정전위분극곡선 상에서 급격한 전류의 변화도 관찰되지 않았지만 72시간 침지 한 시편의 표면에서 공식과 매우 유사한 형태의 표면 형상을 관찰할 수 있었다. 그러나 일부 공식형태를 띤 부분을 제외한다면 대부분의 표면부식형태는 균일부식의 형태를 띠고 있었으며 정전위분극곡선 상에서의 전류의 크기도 비교적 낮은 값을 유지하였다. Fig. 7은 음극환경 작동전위에서 72시간 동안 침지한 시편의 표면에 생성된 공식형태의 부식을 확대한 것이다. 이런 공식 부식은 일반적으로 할로젠원소인  $F^-$ 의 영향에 의한 것으로 생각된다.

#### 4. 결 론

PEMFC의 분리판 소재로 현재 사용하고 있는 고밀도 그라파이트를 대체하기 위해 스테인리스강 표면에 코팅을 하거나 또는 새로운 합금을 개발하려는 노력이 활발히 이루어지고 있는데 본 연구에서는 기본 모체가 되는 스테인리스강의 특성을 파악하기 위해 316L 스테인리스강의 내식성과 ICR을 측정하여 다음과 결론을 얻었다.

1) 316L 스테인리스강의 연료전지환경에서의 동전위 분극 시험을 실시한 결과 양극환경의 작동전위인  $0.6 V_{SCE}$ 에서는 안정된 부동태영역을 나타내었지만 음극환경의 작동전위인  $-0.1 V_{SCE}$ 에서는 불안정한 부동태영역을 나타내었다.

2) 72시간 동안의 정전위 분극 시험 결과, 양극환경에서의 전류가 음극환경에서의 전류보다 낮았으며 양극환경에서는 비교적 안정된 전류 값을 가졌지만 음극환경에서는 전류의 변화가 심하였다. 이는 음극환경에서 시편의 불안정한 부동태 피막형성 때문으로 동전위 분극시험 결과와 일치한다. 정전위 분극시험 뒤 용출액을 ICP분석을 한 결과 음극환경에서 금속이온 용출량이 더 많았으나 음극환경, 양극환경 양쪽 모두에서 316L 스테인리스강이 금속분리판으로서 수용할 수 있는 금속이온 용출량 1 ppm보다 적었다.

3) 연료전지 작동환경에서 침지시간에 따라 교류임피던스 시험을 한 결과 양극환경에서는 침지시간한 뒤 전체적으로 부식저항성이 커지는 반면에 음극환경에서는 침지시간이 길어질수록 부식저항성이 감소하는 것을 확인 할 수 있었다.

4) 각 시간 별로 스테인리스강 316L을 침지 후 FE-SEM을 이용하여 표면변화를 관찰한 결과 양극환경에서는 침지시간에 따른 시편표면의 변화가 거의 없는 반면, 음극환경에서는 부식저항성 감소에 따라 부식으로 인한 표면변화가 관찰되었으며 공식형태의 부식이 관찰되었다.

5) 316L 스테인리스강의 GDL과의 ICR을 측정한 결과,

압력이 증가할 수록 ICR은 감소하였으며 연료전지내 분리판이 받는 압력인  $140 Ncm^{-2}$ 에서 DOE의 목표값을 초과하였다. 연료전지 양극환경과 음극환경에서 시편을 침지한 뒤, 침지시간에 따라 ICR의 변화를 측정한 결과, 양극환경에서 침지한 시편의 경우 침지 뒤 ICR이 증가하였고 음극환경에서 침지한 시편의 경우 침지시간이 길어지면서 ICR값이 감소하였다.

PEMFC 작동환경에서 스테인리스강 316L의 부식거동과 ICR을 평가한 결과 연료전지의 양극환경에서는 안정된 부식거동을 보였으나 음극환경에서는 부식거동이 불안정하였고 부식속도는 양극환경과 음극환경 모두에서 DOE의 목표값을 만족하지 못하였다. 그리고 양극환경에서는 내부저항을 증가시키는 안정된 부동태피막의 영향으로 ICR이 DOE의 목표값( $140 Ncm^{-2}$ 에서  $10 m\Omega \cdot cm^2$ 이하) 보다 높은 값을 나타내었고 음극환경에서는 시편이 연료전지환경에 노출되는 시간이 길어질수록 내식성은 악화되고 ICR은 감소하였다. 따라서 316L 스테인리스강만으로는 PEMFC 금속분리판으로서의 역할을 하기에는 적합하지 않으며 성공적인 금속분리판의 개발을 위해서는 스테인리스강 표면에 내식성과 전기전도도를 향상시킬 수 있는 재료를 코팅을 함으로써 금속분리판의 사용이 가능하도록 특성을 향상시켜야만 한다.

#### 감사의 글

이 연구는 2009년 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구이며 (과제번호: 2009-0074278) 이에 감사드립니다.

#### 참 고 문 헌

1. E. A. Cho and I. H. Oh, *Polymer Sci. and Tech.*, **15**, 5 (2004).
2. A. Hermann, T. Chaudhuri and P. Spagnol, *Int. J. Hydrogen Energy*, **30**, 359 (2005).
3. J. H. Choi, M. H. Kim, and Y. J. Kim, *J. Kor. Inst. Met. & Mater.*, **46**, 817 (2008).
4. D. P. Davies, P. L. Adcock, M. Turpin, and S. J. Rowen, *J. Power Sources*, **86**, 237 (2000).
5. H. Wang, M. A. Sweikart, and J. A. Turner, *J. Power Sources*, **115**, 243 (2003).
6. Y. Wang and Derek O. Northwood, *J. Power Sources*, **191**, 483 (2009).
7. S. J. Lee, C. H. Huang and Y. P. Chen, *J. Mater. Tech.*, **140**, 688 (2003).
8. Y. Wang and D. O. Northwood, *J. Power Sources*, **165**, 293 (2007).
9. S. B. Lee, K. H. Cho, W. G. Lee, and H. Jang, *J. Power Sources*, **187**, 318 (2009).
10. M. Li, S. Luo, C. Zeng, J. Shen, H. Lin, and C. Cao,

- Corros. Sci.*, **46**, 1369 (2004).
11. W. Y. Ho, H. J. Pan, C. L. Chang, D. Y. Wang, and J.J. Hwang, *Surf. & Coat. Technol.*, **202**, 1297 (2007).
  12. J. H. Kim, Y. H. Kim, J. S. Kim, and K. H. Jo, *POSCO Research paper*, **12**, 36 (2007).
  13. R. Tian, J. Sun, and J. Wang, *Int. J. Hydrogen Energy*, **33**, 7507 (2008).
  14. J. Andre, L. Antoni, J. P. Petit, E. D. Vito, and A. Montani, *Int. J. Hydrogen Energy*, **34**, 3125 (2009).