

SUS316L 분리판 부식에 의한 접촉저항 및 고분자 전해질 연료전지 성능에 미치는 영향

김준섭 · 김준범[†]

울산대학교 화학공학부

(2021년 10월 21일 접수, 2021년 11월 10일 수정, 2021년 11월 17일 채택)

Effect of SUS316L Bipolar Plate Corrosion on Contact Resistance and PEMFC Performance

Junseob Kim and Junbom Kim[†]

School of Chemical Engineering, University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea

(Received October 21, 2021; Revised November 10, 2021; Accepted November 17, 2021)

초 록

스테인리스강은 기계적 강도와 전기 전도성이 우수하고 가공이 용이하여 고분자 전해질 연료전지의 분리판으로 적용되고 있다. 하지만 스테인리스강의 부식으로 인하여 접촉 저항이 증가하여 연료전지 성능이 저하하는 문제점이 있고, 귀금속 재료를 코팅하여 내식성을 높일 수 있으나 비용이 증가하는 단점이 있다. 금속 분리판의 내구성 확보와 경제성 개선을 위하여 고분자 전해질 연료전지에서 스테인리스 강 분리판의 부식 거동과 부동태막에 의한 영향을 분석할 필요가 있다. 본 연구에서는 반응 면적이 25 cm²인 SUS316L 분리판을 제작하였고, 수소극과 공기극에 대한 SUS316L 분리판의 부식 거동을 분석하였다. SUS316L 분리판 부식이 연료전지 성능에 미치는 영향을 분극 곡선과 임피던스, 접촉저항을 측정하여 평가하였다. 연료전지 구동 중에 배출 수를 포집하여 SUS316L 분리판에서 용출된 금속 이온의 농도를 분석하였다. SUS316L 분리판에 대하여 공기극에서보다 수소극에서 부식이 활발하게 발생하는 것을 확인하였다. 연료전지 반응에 따라 부동태막이 형성되어 접촉 저항이 증가하였고, 부동태막이 형성된 이후에도 지속적으로 금속 이온이 용출되었다.

Abstract

Stainless steel was applied as bipolar plate (BP) of polymer electrolyte membrane fuel cell (PEMFC) due to high mechanical strength, electrical conductivity, and good machinability. However, stainless steel was corroded and increased contact resistance resulting PEMFC performance decrease. Although the corrosion resistance could be improved by surface treatment such as noble metal coating, there is a disadvantage of cost increase. The stainless steel corrosion behavior and passive layer influence on PEMFC performance should be studied to improve durability and economics of metal bipolar plate. In this study, SUS316L bipolar plate of 25 cm² active area was manufactured, and experiments were conducted for corrosion behavior at an anode and cathode. The influence of SUS316L BP corrosion on fuel cell performance was measured using the polarization curve, impedance, and contact resistance. The metal ion concentration in drained water was analyzed during fuel cell operation with SUS316L BP. It was confirmed that the corrosion occurs more severely at the anode than at the cathode for SUS316L BP. The contact resistance was increased due to the passivation of SUS316L during fuel cell operation, and metal ions continuously dissolved even after the passive layer formation.

Keywords: PEMFC, Bipolar plate, Corrosion, Contact resistance

1. 서 론

고분자 전해질 연료전지는 수소와 산소의 전기화학반응을 이용하여

화학에너지를 전기에너지로 변환시키는 전기화학장치로 발전용, 수송용 등에 적용되고 있다. 이산화탄소 저감과 탄소 중립을 위해서는 연료전지 시장이 확대되어야 하며, 이를 위해서는 연료전지의 가격경쟁성이 개선되어야 한다[1,2].

고분자 전해질 연료전지에서 분리판은 높은 가격과 부피를 차지하고 있는 요소로 스택을 기계적으로 지지하고 전기적으로 연결할 뿐만 아니라 연료와 공기의 이동 통로와 생성물인 물과 열의 배출 및 확산 통로 역할을 한다[3]. 따라서 전기 전도성과 기계적 강도, 낮은 밀도와

[†] Corresponding Author: University of Ulsan
School of Chemical Engineering, Ulsan 44610, Korea
Tel: +82-52-259-2833 e-mail: jbkim@ulsan.ac.kr

기체투과율이 요구되며 유로 제작을 위하여 가공이 용이해야 한다 [4,5]. 분리판 소재로는 흑연과 금속 분리판이 주로 사용되고 있으며 흑연 분리판은 내식성과 전도성이 우수하나 낮은 기계적강도로 인하여 가공이 어렵고, 높은 기체투과도로 인하여 일정 이상의 두께가 요구되는 단점이 있어 수송용 연료전지에 적용하는데 한계가 있다. 이에 반하여 금속 분리판은 기계적 강도가 높고 가공이 용이하여 대량 생산이 가능하고 연료전지 스택의 가격과 부피를 저감할 수 있어 수소연료전지차의 분리판으로 사용되고 있다[6-9]. 하지만 금속 분리판의 경우 화학적 안정성이 낮아 연료전지 운전 조건에서 부식에 취약한 단점이 있다. 금속의 부식에 의하여 용출된 금속 이온이 전극과 전해질막을 피독시켜 연료전지 성능과 내구성을 낮출 수 있으며[10-12], 부식으로 형성된 부동태 피막은 분리판과 기체확산층 간의 계면접촉 저항을 증가시킨다[13-15]. 미국 에너지성(DOE)에서는 2025년까지 분리판의 가격을 0.5 \$/KW로 낮추고 분리판의 부식 전류가 1 uA/cm² 이하, 접촉 저항이 10 mΩ · cm² 이하가 되는 것을 목표로 하고 있다 [16]. 금속 분리판으로는 기계적 강도가 높고 가공이 용이한 스테인리스강이 주로 사용되고 있고 부동태 피막 형성을 최소화하도록 질화처리, 침탄 처리, 귀금속 코팅 등 표면 처리를 통하여 내식성을 높이고 있다[17-20]. 하지만 이러한 표면 처리는 분리판 가격 상승의 원인이 된다. 따라서 금속 분리판의 내구성 개선과 표면 처리 최적화를 통한 비용 절감과 생산성 증대를 위하여 연료전지 운전 환경에서 금속 분리판의 부식 기제를 규명할 필요가 있다. 이를 위하여 스테인리스강의 연료전지의 운전환경 모사를 통한 부식 거동에 관한 연구가 수행되었다[21-24]. Yang[24]은 수소극과 공기극에 대한 SUS316L의 부식 거동을 모사 실험을 수행하였고, 수소극 환경에서 부동태막의 크롬 함량이 증가하고 공기극 환경에서 부동태막의 철 함량이 증가하여 공기극과 수소극 환경에 대한 부식 메커니즘과 부동태막 조성이 다른 것을 확인하였다. 하지만 금속 분리판의 분석 한계로 인하여 실제 연료전지 구동 환경에서 금속 분리판의 부식 거동에 관한 연구는 거의 수행되지 않아, 금속 분리판 부식에 의한 접촉저항 증가 및 구성요소 열화 등의 연료전지 성능 저하에 관한 연구가 수행될 필요가 있다. 본 연구에서는 스테인리스강이 고분자 전해질 연료전지의 수소극 및 공기극에서의 부식 거동을 분석하기 위하여 표면처리를 하지 않은 SUS316L 분리판을 제작하였고 정전위 실험과 전기화학분석법을 통하여 부식이 연료전지 성능에 미치는 영향을 확인하였다.

2. 실험

2.1. 단위전지 제작 및 평가

고분자 전해질 연료전지에서 금속 분리판의 부식 거동과 부식에 의

한 연료전지 성능 영향을 분석하기 위하여 전극 면적이 25 cm² 이고 채널이 5개인 다채널 사형유로형상의 SUS316L 분리판을 제작하였다. 수소극 및 공기극의 운전 환경에 대한 부식 거동을 분리하여 분석하기 위하여 2개의 동일한 단위전지를 이용하였고, 수소극에 SUS316L 분리판을 적용한 경우에 공기극에는 흑연 분리판을 적용하여 수소극에서의 부식 거동을 분석할 수 있도록 실험하였고 공기극의 경우에도 동일한 방법으로 실험을 수행하였다.

음극과 양극의 백금 로딩량이 0.4 mg_{Pt}/cm²인 막전극접합체(G-type, CNL)와 기체확산층(JNT20-A3, JNTG)을 사용하였고 기체확산층과 분리판 간의 접촉저항을 최소화하기 위하여 PTFE 개스킷을 이용하여 기체확산층이 약 30% 압축되도록 단위전지를 체결하였다. 제작한 단위전지를 OCV - 0.4 V - OCV 범위에서 전압순환 활성화기법을 30회 반복하여 성능을 안정화시킨 후 전기화학분석을 수행하였다. SUS316L 분리판의 경우에 부식에 의한 영향을 고려하기 위하여 흑연 분리판을 이용하여 활성화 단계 및 성능 평가를 거친 후 SUS316L 분리판으로 교체한 후에 성능 평가와 정전위 실험을 수행하였다. 정전위 실험은 수소와 공기 유량을 각각 260 및 830 sccm으로 공급하여 0.6 V에서 20시간 동안 구동하였고, 성능 평가 후 정전위 실험을 5회 반복하였다. 또한 운전 간에 배출된 생성수를 포집하여 고주파 유도 결합 플라즈마(5110 ICP-OES, Agilent Technologies)를 이용하여 SUS316L 분리판으로부터 용출된 금속 이온을 검출하였다.

2.2. 전기화학분석

전기화학분석은 80 °C, 상대습도 100% 조건에서 분극곡선(IV curve), 전기화학 임피던스 분광법(electrochemical impedance spectroscopy, EIS), 순환전압전류법(Cyclic voltammetry, CV)으로 측정하였다. IV-curve 측정 시 수소와 공기 유량을 부하전류밀도에 대해 양론 비 1.5 및 2.0에 해당하는 유량을 공급하였고 각각의 부하전류에서 1분간 유지하여 2 Hz 간격으로 전압을 측정하였다. EIS는 VMP 3B-20 (Biologic)을 사용하여 100 mHz~10 KHz 사이의 주파수 범위에서 임피던스를 측정하였다. CV는 수소와 질소 유량을 각각 100 및 500 sccm을 공급하는 조건에서 50 mV/s의 스캔 속도로 0.1 V~1.2 V 범위에서 응답 전류를 측정하였다.

2.3. 계면 접촉 저항 측정

본 연구에 사용된 SUS316L 분리판은 측정 전에 사포를 이용하여 표면을 연마한 뒤 아세톤과 증류수를 이용하여 초음파분산기에서 20 분간 세척하여 분석을 수행하였고, 본 연구에서 사용한 Ex-situ 접촉 저항 측정 기법과 In-situ 접촉 저항 측정 기법을 Figure 1(a), 1(b)에 각각 나타내었다. Ex-situ 접촉 저항의 경우 Figure 1(a)와 같이, Wang

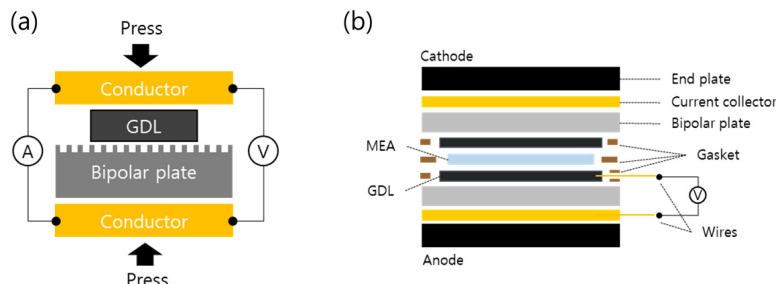


Figure 1. ICR measurement method (a) Ex-situ (b) In-situ.

[13]이 제시한 방법을 응용한 것으로 분리판의 유로에 대한 접촉면적 영향을 고려하기 위하여 분리판 양면에 기체확산층을 쌓지 않고 분리판의 유로가 형성된 면에만 기체확산층을 두어 접촉저항을 측정하였다. 금으로 코팅된 전도판 사이에 분리판과 기체확산층(39BB, SGL)을 쌓아 50~300 N/cm² 범위의 압력으로 압착하였으며 (2440 Source meter, Keithley)를 사용하여 100 mA의 전류를 인가하였고 두개의 전도판 간의 전압을 DAQ(USB-6251, NI)를 이용하여 측정하였다.

In-situ 접촉 저항은 Figure 1(b)에서 Lædre[15]가 제시한 것과 같이, 순도가 99.95%이고 두께가 0.25 mm인 금 와이어를 기체확산층, 막전극접합체 계면과 분리판, 집전판 계면에 접촉시켰고, PTFE 개스킷과 O-ring 개스킷을 이용하여 금 와이어를 실링 및 절연하여 기체확산층과 분리판 간에 형성되는 전압을 측정하였다. 운전 간에 계면에서 형성된 전압을 단위전지의 출력 전류밀도로 나누어 접촉저항을 계산하였다.

3. 결 과

3.1. SUS316L 분리판 성능 평가

분리판 소재에 대한 접촉저항과 금속 분리판의 부식에 의한 접촉저항 경향을 측정하기 위하여 Figure 1(a)와 같은 방법으로 50~300 N/cm² 압력 범위에 대한 접촉 저항을 측정하였고, 그에 대한 결과를 Figure 2에 나타내었다. 분리판 종류에 관계없이 압력이 증가할수록 접촉 저항이 감소하였고, SUS316L 분리판의 경우 낮은 압력에서 표면 거칠기에 의한 영향으로 접촉 저항이 큰 것으로 판단되었다. 흑연 분리판의 150 N/cm²의 압력에서 접촉 저항은 6.55 mΩ · cm² 으로 DOE 요구 조건인 10 mΩ · cm²를 만족하였지만 표면 연마 및 세척을 통하여 자연산화막을 제거한 SUS316L 분리판의 접촉 저항은 23.5 및 25.3 mΩ · cm²로 흑연 분리판에 비하여 약 3배 이상의 접촉 저항을 나타내었고, 두 개의 SUS316L 분리판의 접촉저항이 거의 동일한 것을 확인하였다. 분리판의 저항을 측정하기 위하여 Figure 1(a)와 같은 방법으로 기체확산층을 제외하고 분리판을 전도판 사이에 두어 저항을 측정하였을 경우, 150 N/cm²의 압력에서 흑연 분리판과 SUS316L 분리판의 저항은 각각 1.1 및 1.9 mΩ · cm²으로 분리판의 내재저항은 큰 차이가 없는 것으로 확인되었다. 또한 Figure 2에서 150 N/cm² 이하의 낮은 압력 조건에서 SUS316L 분리판에서 흑연 분리판에서보다 압력에 대한 접촉저항 감소폭이 크기 때문에 SUS316L의 표면 거칠기로 인하여 SUS316L 분리판과 기체확산층 계면에서의 접촉 저항이 큰 것으로 판단된다.

SUS316L 분리판이 연료전지 성능에 미치는 영향을 비교하기 위하여 제작한 단위전지를 이용하여 전기화학분석을 수행하였고 Figure 3(a)에 IV curve, Figure 3(b)에 Nyquist plot을 나타내었다. Figure 3(a)에서 0.6 V의 전류밀도는 흑연 분리판과 수소극 및 공기극 SUS316L 분리판에 대하여 864.71, 742.69 및 601.72 mA/cm²로 흑연분리판만을 사용한 경우에 가장 높은 성능을 나타내었고, 수소극에 SUS316L분리판을 적용한 경우에 공기극에 적용한 것 보다 높은 성능을 나타내었다. 이는 동일한 막전극접합체에서 분리판만을 교체한 것으로 SUS316L분리판과 기체확산층 간의 높은 접촉저항으로 인하여 성능이 저하되는 것으로 고려할 수 있다. 또한 Figure 3(a), (b)에서 SUS316L 분리판으로 교체하였을 경우에 활성화 손실 및 전하전달 저항이 증가하였다. 이는 SUS316L 분리판을 교체 후에 부식을 영향을 최소화하기 위하여 활성화 단계를 거치지 않고 연료전지 성능을 평가하였기 때문에 막수화도와 전극 활성이 다소 감소한 것으로 판단된다.

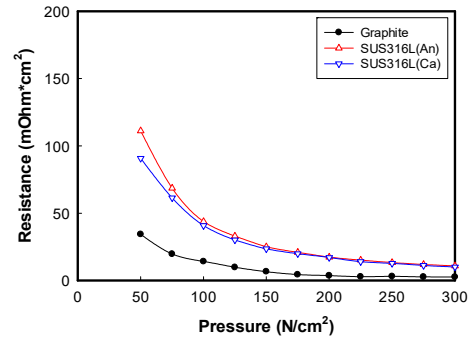


Figure 2. ICR under various compression pressures.

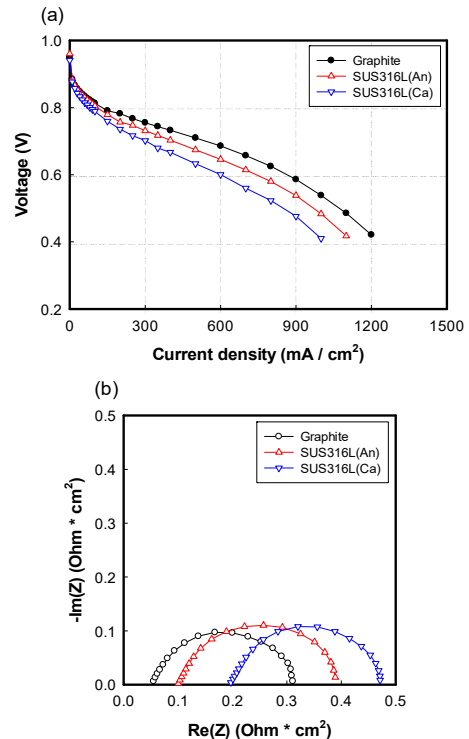


Figure 3. Cell performance with graphite and SUS316L BP (a) IV curve (b) Nyquist plot.

Figure 3(b)에서 흑연분리판과 수소극 및 공기극 SUS316L분리판에 대하여 ohmic 저항은 49.53, 99.74 및 195.67 mΩ · cm²로 SUS316L 분리판을 적용한 경우에 ohmic 저항이 증가하는 것으로 확인되었고 공기극 SUS316L분리판에서 수소극 SUS316L분리판보다 더 높은 ohm 저항을 나타내었다. 이는 표면처리를 하지 않은 SUS316L 분리판을 연료전지에 적용하여 운전하였을 때 부동태화로 인하여 접촉 저항이 증가하게 되고 Figure 2에서와 같이, 동일한 SUS 316L 분리판을 사용하더라도 수소극과 공기극에 대하여 노출되는 화학적 환경과 운전 전압이 다르기 때문에 ohmic 저항이 다른 것으로 판단된다. SUS316L 시편의 연료전지 운전환경 모사실험에서 부동태막의 조성이 수소극 전압(-0.1 V_{SCE})에서는 크롬의 함량이 우세하였고, 공기극 전압(0.6 V_{SCE})에는 크롬과 철 비율 거의 동일하여, 수소극과 공기극 운전환경에 대한 SUS316L 시편의 부동태막 조성이 다른 것으로 보고 되었다[21,24]. 또한 기체확산층과 분리판 간의 계면접촉저항은 SUS316L

의 부동태막 두께와 조성에 연관 있는 것으로 보고되었다[22]. 따라서 Figure 3(b)에서 공기극 SUS316L 분리판에서 ohmic 저항이 수소극 SUS316L 분리판에서보다 더 높은 것은 공기극 SUS316L 분리판의 표면에 안정한 부동태막이 형성되어 접촉 저항이 크게 증가하였고, 이에 반하여 수소극에서는 공기극에 비하여 불안정한 부동태막이 형성되어 접촉저항이 낮은 것으로 고려할 수 있다.

3.2. 계면 접촉 저항

단위전지에서 전기화학 임피던스 분광법을 이용하여 측정하는 ohmic 저항은 전해질막의 이온전달저항을 포함한 전기저항 및 접촉 저항의 합으로 나타나기 때문에 분리판과 기체확산층 계면접촉저항만을 측정하는 것에 한계가 있다. 또한 Ex-situ 접촉저항 측정법은 단위전지를 분리해야 하는 단점이 있고, 제조립 시 분리판에 형성된 부동태막으로 인하여 접촉저항이 크게 증가하는 것으로 확인되었다. 이로 인하여 단위전지 상태에서의 접촉저항 측정과 구동 간에 부식으로 인한 접촉 저항 경향을 측정하기 위한 In-situ 접촉저항 측정법이 요구되었다.

단위전지 상태에서 분리판과 기체확산층의 계면접촉저항 경향을 측정하기 위하여 Figure 1(b)와 같이 금 와이어를 이용한 In-situ 접촉 저항 측정 단위전지를 제작하였고, 운전 전압에 대한 출력전류밀도와 분리판과 기체확산층의 계면에서 형성되는 전압을 측정하여 접촉 저항 값을 계산하였다. 후연 분리판을 이용하여 Figure 4(a)에 운전 전압에 대한 출력 전류밀도를, Figure 4(b)에 출력 전류에 대한 분리판과 기체확산층 간의 전압을, Figure 4(c)에 접촉 저항을 각각 나타내었다. Figure 4(a)에서 단위 전지를 0.8, 0.6, 0.4 V의 전압으로 운전 전압을 낮출수록 출력전류밀도가 증가하였고 Figure 4(b)에서와 같이, 분리판과 기체확산층 계면에서 형성된 전압도 증가하였다. 이는 출력전류밀도가 증가함에 따라 계면접촉저항에 비례하여 전압이 증가한 것으로 고려할 수 있고, Ohm의 법칙을 이용하여 저항을 계산하였을 때 Figure 4(c)에 나타낸 것과 같이, 6.21, 6.86 및 6.83 $m\Omega \cdot cm^2$ 로 거의 일정한 저항 값을 나타내는 것을 확인하였다. 이를 통하여 Figure 1(b)와 같은 방법으로 단위전지 상태에서 분리판과 기체확산층 계면에서의 접촉저항을 측정할 수 있는 것을 확인하였고, 연료전지 구동 조건에서 SUS316L 분리판의 부식에 대한 계면접촉저항 경향을 실시간으로 측정할 수 있었다.

SUS316L분리판을 이용하여 동일한 방법으로 접촉 저항을 측정하였을 때 수소극 및 공기극 SUS316L 분리판에 대하여 각각 43.43 및 123.88 $m\Omega \cdot cm^2$ 로 Figure 3(b)에서 측정된 임피던스 결과와 동일하게 SUS316L 분리판을 공기극에 적용하였을 때 수소극 SUS316L 분리판보다 접촉저항이 높은 것으로 확인되었다.

3.3. 정전위 장기평가 실험

연료전지 구동 간에 SUS316L 분리판의 부식 거동과 연료전지 성능에 미치는 영향을 분석하기 위하여 0.6 V에서 20시간 운전 후에 분극 곡선 및 임피던스를 측정하였고, 이를 5회 반복 실험하여 연료전지 성능을 비교하였다. 정전위 100시간 운전에 대한 연료전지 성능을 시간당 평균값으로 계산하였고, 그 결과를 Figure 5에 나타내었다. Figure 5에서 운전 초기의 연료전지 성능은 SUS316L 분리판을 수소극 또는 공기극에 적용한 경우에 각각 918.22 및 681.97 mA/cm^2 로 수소극에 SUS316L 분리판을 적용한 경우에 연료전지의 성능이 높았으며, 이는 낮은 접촉저항으로 인한 것으로 판단된다. 또한 정전위 운전 간 연료전지 성능은 수소극의 경우에는 운전 간 큰 감소 없이 성능이 유지

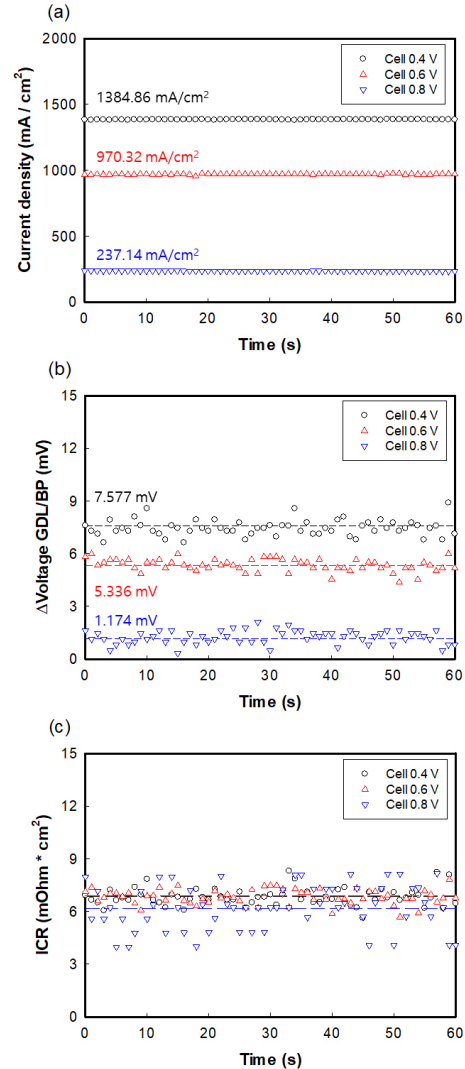


Figure 4. In-situ ICR of graphite BP (a) current density (b) voltage in BP/GDL interface (c) ICR.

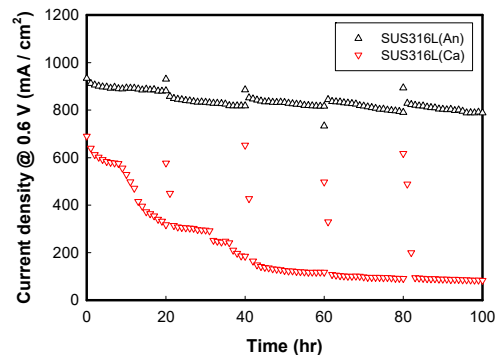


Figure 5. Fuel cell performance degradation with SUS316L BP (0.6 V).

되었지만 공기극의 경우 약 10시간 경과 시 성능이 급격하게 감소하기 시작하였고, 성능 평가 후 정전위 운전을 반복하였을 때 성능이 다소 회복되었지만 운전 시간이 지속될수록 감소된 성능 경향을 유지하였다. 정전위 운전에 대한 영향을 비교하기 위하여 평가 전 후에 임피던

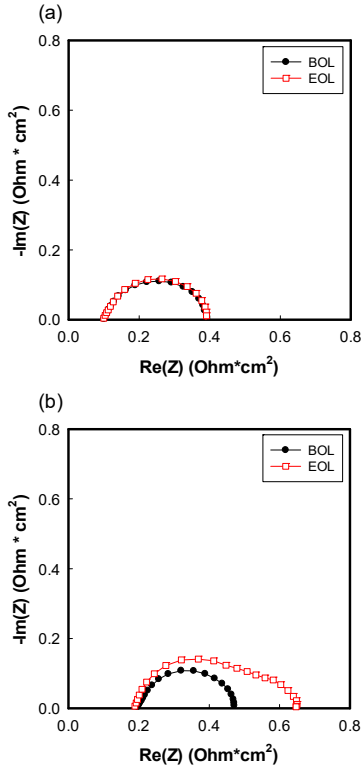


Figure 6. Nyquist plot with different bipolar plate (a) SUS316L BP (Anode), (b) SUS316L BP (Cathode).

스를 측정하였고, SUS316L 분리판을 수소극에 적용한 결과를 Figure 6 (a)에, 공기극에 적용한 결과를 Figure 6(b)에 나타내었다. Figure 6 (a)에서 SUS316L 분리판의 수소극에 대한 영향은 정전위 운전 전 후에 거의 동일한 것으로 나타났지만, Figure 6(b)에서와 같이, 공기극에서는 ohmic 저항은 다소 감소하였지만 전하전달저항과 물질전달저항이 크게 증가하였다. 이는 공기극에 SUS316L 분리판을 적용하였을 때 정전위 운전 간에 막수화도가 증가하여 ohmic 저항이 감소하지만 반응으로 생성된 수분이 원활히 배출되지 않고 응축되어 분리판의 채널과 기체확산층의 기공을 막는 것으로 고려할 수 있다. 100 정전위 운전에서 연료전지 구동 간에 SUS316L 분리판과 기체확산층의 접촉 저항은 큰 변화 없이 유지되었다. 공기극 SUS316L 분리판의 경우 정전위 운전 간 극심한 성능 저하가 발생했지만 이는 부식으로 인한 접촉 저항 증가보다는 수분 응축으로 인한 물질전달손실 영향으로 확인되었다.

3.4. SUS316L 분리판 부식 거동

100시간 정전위 운전 후의 SUS316L 분리판의 접촉저항과 표면을 측정하였고, 정전위 운전 간 배출되는 생성수를 시간 간격으로 포집하여 용출되는 금속 이온 농도를 측정하였고 이 결과들을 토대로 수소극과 공기극에 대한 SUS316L 분리판의 부식 거동을 분석하였다.

Figure 7에 평가 전 후의 SUS316L 분리판에 대한 접촉 저항을 나타내었다. Figure 7에서 수소극 및 공기극 SUS316L 분리판에 관계없이 초기 상태에 비하여 접촉 저항이 전체적으로 증가하였고, 수소극 및 공기극 분리판의 접촉저항은 150 N/cm² 압력에서 각각 67.7 및 111.8 mΩ · cm²로 공기극에 사용된 SUS316L 분리판의 접촉 저항이 더 높은 것으로 확인되었다. 평가 전 후의 분리판 표면을 광학현미경을 이

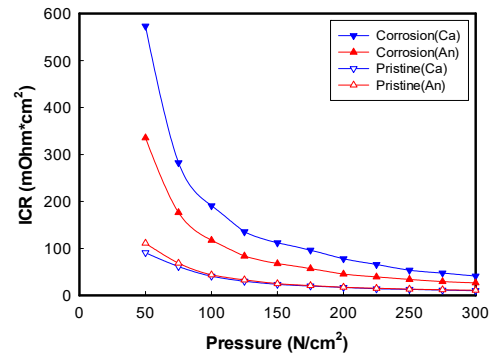


Figure 7. ICR change with different bipolar plate under various compression pressures.

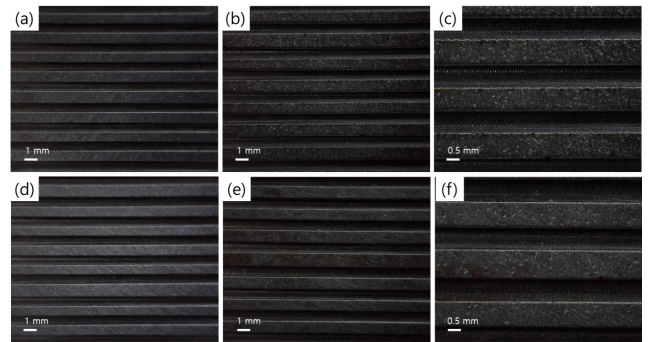


Figure 8. Optical photographs of SS316L BP (a) pristine anode (1 mm), (b) corroded anode (1 mm), (c) corroded anode (0.5 mm), (d) pristine cathode (1 mm), (e) corroded cathode (1 mm), (f) corroded cathode (0.5 mm).

용하여 측정하였고 Figure 8(a-c)에 수소극 분리판 표면을, Figure 8(d-f)에 공기극 분리판 표면을 나타내었다. Figure 8(a), (d)에는 표면 연마 및 초음파 세척을 한 뒤의 초기 상태의 분리판 표면을, Figure 8(b), (e)에는 평가 후 부식된 분리판 표면을 Figure 8(c), (f)에는 부식된 표면을 확대하여 나타내었다. Figure 8(b), (c)에서 수소극에 사용된 분리판은 기체확산층과 맞닿는 릿 부분에서 공식에 의한 부식이 다수 관찰되었고, 채널과 릿 경계에서 부식이 극심한 것으로 관찰되었다. 이에 반해 공기극에 적용된 분리판의 경우 Figure 8(e), (f)와 같이 공식에 의한 부식은 수소극보다 적은 것으로 확인되었다.

광학 현미경을 이용하여 분리판 표면을 측정하였을 때 불특정 부위에 부식이 발생하기 때문에 반응면적에 대하여 분리판의 접촉저항이 균일하지 않을 것으로 예상할 수 있다. 따라서 본 연구에서 적용된 Ex-situ, In-situ 접촉 저항법은 분리판과 기체확산층의 접촉저항을 측정할 수 있지만 분리판 부식에 대한 영향과 접촉저항 경향을 분석하기에 한계가 있고 국소부위의 접촉저항 경향을 측정할 수 있도록 개선될 필요가 있다.

정전위 운전 간 수소극과 공기극의 배출 수에 대한 철 이온 농도를 Table 1과 Figure 9에 정리하였다. 철 이온 농도는 운전 초기에 SUS316L 분리판을 적용한 수소극과 공기극에서 93.8 및 5.59 ppb로 수소극 SUS316L 분리판에서 공기극에서보다 과량의 철 이온이 용출되었다. 또한 Figure 9에서 운전 시간이 지속됨에 따라 SUS316L 분리판이 부동태화 되어 철 이온 농도가 감소하였지만 100시간 정전위 구동 간에 10시간 간격으로 ICP를 측정하였을 때 수소극 및 공기극

Table 1. Metal Ion Concentration in Drain Water.

Time(hr)	Experiment 1		Experiment 2	
	Anode (SUS316L)	Cathode (Graphite)	Anode (Graphite)	Cathode (SUS316L)
1	93.84	4.36	23.18	5.59
5	37.31	2.51	11.52	3.63
10	23.8	0.31	7.31	1.12
20	9.4	0	2.58	0.89

SUS316L에서 각각 13.55 ± 5 및 0.95 ± 0.5 ppb로 지속적으로 철 이온이 용출되었다. 이는 광학 현미경을 통한 표면 측정 결과와 동일하지만, 정전위 운전 간에 공기의 유량이 수소의 유량에 비하여 3배 이상으로 공급되고, 반응으로 생성된 물이 주로 공기극으로 배출되기 때문에 배출 수의 철 이온 농도를 단순 비교하는 것은 어려움이 있다. 하지만 Figure 8(b), 8(e)의 분리판 표면에서와 같이, 수소극 SUS316L 분리판에서는 불안정한 부동태막이 형성되어 연료전지 구동 간에 부식이 극심하게 발생하고 공기극 SUS316L 분리판에서는 안정적인 부동태막이 형성되어 방식되지만 접촉저항이 증가하여 연료전지 성능이 저하되는 것으로 판단된다.

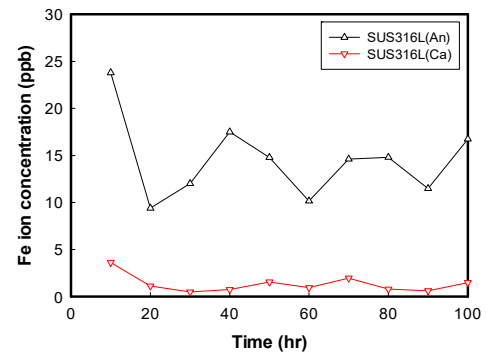
이에 더하여 Table 1 한쪽 전극에서만 SUS316L 분리판을 사용하였지만 흑연분리판을 사용한 전극의 배출 수에서도 철 이온이 검출되어 SUS316L 분리판에서 용출된 철 이온이 전해질막을 통해 크로스오버되는 것을 확인하였다. 또한 공기극 SUS316L 분리판의 경우 수소극 배출 수에서 철 이온 농도가 높은 것으로 측정되어 SUS316L 분리판에서 용출된 철 이온은 수소극에서 공기극으로의 확산보다 공기극에서 수소극으로의 확산 속도가 빠른 것으로 판단된다.

본 연구를 통하여 표면처리하지 않은 SUS316L 분리판을 고분자 전해질 연료전지에 적용하였을 경우에 부동태화로 인하여 접촉저항이 증가하게 되고 부동태막 형성 이후에도 지속적으로 부식이 진행되는 것을 확인하였다.

4. 결 론

본 연구에서는 SUS316L 분리판을 제작하여 고분자 전해질 연료전지 구동 간에 수소극 및 공기극에서 SUS316L 분리판의 부식 거동 분석과 연료전지 성능 평가 실험을 수행하였다. 표면 처리하지 않은 SUS316L 분리판을 연료전지에 적용한 경우에 흑연분리판과 비교하여 접촉저항이 증가하였고, 공기극에 SUS316L 분리판을 적용한 경우 수소극에 비하여 연료전지 성능이 더욱 저하되었다. 이는 SUS316L 분리판이 연료전지 구동환경에서 부동태화 되지만 수소극과 공기극의 다른 운전 환경에 대한 영향으로 공기극 SUS316L 분리판에서 접촉저항이 더 높은 것으로 판단된다.

정전위 장기 평가 후 접촉저항을 측정하였을 때 연료전지 성능 경향과 동일하게 공기극 SUS316L 분리판의 접촉저항이 수소극에서보다 크게 증가한 것으로 확인되었다. 하지만 광학 현미경을 이용하여 분리판 표면을 측정하였을 때 공기극에서보다 수소극에서 다수의 공식에 의한 부식이 관찰되었다. ICP를 통하여 정전위 구동 간에 지속적으로 철 이온이 용출되는 것을 확인하였고, 이를 통하여 수소극 SUS316L 분리판에서는 불안정한 부동태막이 형성되어 연료전지 구동 간에 부식이 극심하게 발생하고 공기극 SUS316L 분리판에서는 안정적인 부동태막이 형성되어 방식되지만 접촉저항이 크게 증가하는

**Figure 9. Fe ion concentration in drain water (SUS316L BP).**

것으로 확인되었다.

감 사

이 연구는 2020년도 산업통상자원부 및 산업기술평가관리원(KEIT) 연구비 지원에 의한 연구임(20011633)

References

1. A. Alaswad, A. Omran, J. R. Sodre, T. Wilberforce, G. Pignatelli, M. Dassisti, A. Baroutaji, and A. G. Olabi, Technical and commercial challenges of proton-exchange membrane (PEM) fuel cells, *Energies*, **14**, 144 (2021).
2. E. Ogungbemi, T. Wilberforce, O. Ijaodola, J. Thompson, and A. G. Olabi, Selection of proton exchange membrane fuel cell for transportation, *Int. J. Hydrog. Energy*, **46**, 30625-30640 (2021).
3. Y. Song, C. Zhang, C. Y. Ling, M. Han, R. Y. Yong, D. Sun, and J. Chen, Review on current research of materials, fabrication and application for bipolar plate in proton exchange membrane fuel cell, *Int. J. Hydrog. Energy*, **45**, 29832-29847 (2020).
4. S. Shimpalee, V. Lilavivat, H. McCrabb, Y. Khunatorn, H. K. Lee, W. K. Lee, and J. W. Weidner, Investigation of bipolar plate materials for proton exchange membrane fuel cells, *Int. J. Hydrog. Energy*, **41**, 13688-13696 (2016).
5. Y. Leng, P. Ming, D. Yang, and C. Zhang, Stainless steel bipolar plates for proton exchange membrane fuel cells: Materials, flow channel design and forming processes, *J. Power Sources*, **451**, 227783 (2020).
6. N. F. Asri, T. Husaini, A. B. Sulong, E. H. Majlan, and R. W. D. Wan, Coating of stainless steel and titanium bipolar plates for

- anticorrosion in PEMFC: A review, *Int. J. Hydrog. Energy*, **42**, 9135-9148 (2017).
7. K. Fu, T. Tian, Y. Chen, S. Li, C. Cai, Y. Zhang, W. Guo, and M. Pan, The durability investigation of a 10-cell metal bipolar plate proton exchange membrane fuel cell stack, *Int. J. Energy Res.*, **43**, 2605-2614 (2018).
 8. P. Yi, D. Zhang, D. Qiu, L. Peng, and X. Lai, Carbon-based coatings for metallic bipolar plates used in proton exchange membrane fuel cells, *Int. J. Hydrog. Energy*, **44**, 6813-6843 (2019).
 9. K. Karacan, S. Celik, S. Toros, M. Alkan, and U. Aydin, Investigation of formability of metallic bipolar plates via stamping for light-weight PEM fuel cells, *Int. J. Hydrog. Energy*, **45**, 35149-35161 (2020).
 10. J. Wind, R. Späh, W. Kaiser, and G. Böhm, Metallic bipolar plates for PEM fuel cells, *J. Power Sources*, **105**, 256-260 (2002).
 11. M. Sulek, J. Adams, S. Kaberline, M. Ricketts, and J. R. Waldeker, In situ metal ion contamination and the effects on proton exchange membrane fuel cell performance, *J. Power Sources*, **196**, 8967-8972 (2011).
 12. A. Miyazawa, E. Tada, and A. Nishikata, Influence of corrosion of SS316L bipolar plate on PEFC performance, *J. Power Sources*, **231**, 226-233 (2013).
 13. H. Wang, M. A. Sweikart, and J. A. Turner, Stainless steel as bipolar plate material for polymer electrolyte membrane fuel cells, *J. Power Sources*, **115**, 243-251 (2003).
 14. J. Barranco, F. Barreras, A. Lozano, and M. Maza, Influence of CrN-coating thickness on the corrosion resistance behaviour of aluminium-based bipolar plate, *J. Power Sources*, **196**, 4283-4289 (2011).
 15. S. Lædre, O. E. Kongstein, A. Oedegaard, F. Seland, and H. Karoliussen, Measuring in situ interfacial contact resistance in a proton exchange membrane fuel cell, *J. Electrochem. Soc.*, **166**, F853-F859 (2019).
 16. Drive U. Fuel cell technical team roadmap. New York: US Drive Partnership, 1-34 (2017).
 17. R. A. Antunes, M. C. L. Oliveria, G. Ett, and V. Ett, Corrosion of metal bipolar plates for PEM fuel cells: A review, *Int. J. Hydrog. Energy*, **35**, 3632-3647 (2010).
 18. E. Kahveci and I. Taymaz, Experimental study on performance evaluation of PEM fuel cell by coating bipolar plate with materials having different contact angle, *Fuel*, **253**, 1274-1281 (2019).
 19. F. Madadi, A. Rezaeian, H. Edris, and M. Zhiani, Improving performance in PEMFC by applying different coatings to metallic bipolar plates, *Mater. Chem. Phys.*, **238**, 121911 (2019).
 20. C. Zhou, J. Wang, S. Hu, H. Tao, B. Fang, L. Li, J. Zheng and L. Zhang, Enhanced corrosion resistance of additively manufactured 316L stainless steel after heat treatment, *J. Electrochem. Soc.*, **167**, 141504 (2020).
 21. Y. Wang and D. O. Northwood, Effects of O₂ and H₂ on the corrosion of SS316L metallic bipolar plate materials in simulated anode and cathode environments of PEM fuel cell, *Electrochim. Acta*, **52**, 6793-6798 (2007).
 22. K. Feng, G. Wu, Z. Li, X. Cai, and P. K. Chu, Corrosion behavior of SS316L in simulated and accelerated PEMFC environments, *Int. J. Hydrog. Energy*, **36**, 13032-13042 (2011).
 23. Y. Yang, X. Ning, H. Tang, L. Guo, and H. Liu, Effects of potential on corrosion behavior of uncoated SS316L bipolar plate in simulated PEM fuel cell cathode environment, *Fuel Cells*, **14**, 868-875 (2014).
 24. Y. Yang, X. Ning, H. Tang, L. Guo, and H. Liu, Effects of passive films on corrosion resistance of uncoated SS316L bipolar plates for proton exchange membrane fuel cell application, *Appl. Surf. Sci.*, **320**, 274-280 (2014).

Authors

Junseob Kim; M.Sc., Doctor's course, School of Chemical Engineering, University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea; dhwm007@naver.com
 Junbom Kim; Ph.D, Professor, School of Chemical Engineering, University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea; jbkim@ulsan.ac.kr