

인산형 연료전지(PAFC)의 전극 성능 향상을 위한 미세다공층(MPL)의 적용

하지훈^{1,2} · 강성민¹ · 오유관² · 백동현^{1*}

¹한국에너지기술연구원 울산차세대전지연구개발센터

²부산대학교 응용화학공학부

(2023년 11월 22일 접수 : 2024년 1월 15일 수정 : 2024년 1월 15일 채택)

Application of Micro Porous Layer (MPL) for Enhance of Electrode Performance in Phosphoric Acid Fuel Cells (PAFCs)

Jihun Ha^{1,2}, Sungmin Kang¹, You-Kwan Oh², and Dong-Hyun Peck^{1*}

¹Ulsan Advanced Energy Technology R&D Center, Korea Institute of Energy Research (KIER), 25,
Techno saneop-ro 55beon-gil, Nam-gu, Ulsan 44776, Republic of Korea

²School of Chemical Engineering, Pusan National University, 2, Busandaehak-ro 63beon-gil,
Geumjeong-gu, Busan 46241, Republic of Korea

(Received November 22, 2023 : Revised January 15, 2024 : Accepted January 15, 2024)

초 록

인산형 연료전지(PAFC)의 전기화학적 성능에 영향을 미치는 핵심 부품은 전극 촉매, 전해질 매트릭스 및 기체확산층(GDL) 등이 있다. 또한 전극의 성능 향상을 위해 GDL 위에 미세다공층(MPL)을 적용하는 방법도 있다. MPL은 주로 고분자 전해질 연료전지(PEMFC)에서 전극 내부의 수분 관리와 접촉 저항 저감을 위한 중간 완충층 역할을 한다. 본 연구에서는 MPL이 PAFC 전극의 성능에 미치는 영향을 확인하기 위해 MPL이 없는 GDL과 MPL을 적용한 GDL로 전극을 제작하여 단위전지의 내부 저항과 분극 곡선을 서로 비교하였다. 본 실험 결과에서 MPL을 적용하였을 때 전극의 출력 밀도가 170.2 mW/cm²에서 192.1 mW/cm²으로 향상되었다. MPL은 PEMFC에서와 같이 PAFC 전극에서도 매트릭스와 전극에서 액체 전해질과 물 관리에 효과적으로 작용하고 전극 내부의 물질 전달이 향상되어 전극 성능이 향상된 것으로 판단된다. 또한, MPL의 적용으로 PAFC 전극의 내부 저항이 감소하였고 장기 운전시에도 안정적인 성능을 지속적으로 유지하는 결과로부터 PAFC 전극에도 MPL을 적용하면 전극 성능을 향상시킬 수 있음을 확인할 수 있었다.

Abstract : The key components of a Phosphoric acid fuel cell (PAFC) are an electrode catalyst, an electrolyte matrix and a gas diffusion layer (GDL). In this study, we introduced a micro-porous layer on the GDL of PAFC to enhance liquid electrolyte management and overall electrochemical performance of PAFC. MPL is primarily used in polymer electrolyte membrane fuel cells to serve as an intermediate buffer layer, effectively managing water within the electrode and reducing contact resistance. In this study, electrodes were fabricated using GDLs with and without MPL to examine the influence of MPL on the performance of PAFC. Internal resistance and polarization curves of the unit cell were measured and compared to each other to assess the impact of MPL on PAFC electrode performance. As the results, the application of MPL improved power density from 170.2 to 192.1 mW/cm². MPL effectively managed elec-

*E-mail: dhpeck@kier.re.kr

trolyte and water within the matrix and electrode, enhancing stability. Furthermore, the application of MPL reduced internal resistance in the electrode, resulting in sustained and stable performance even during long-term operation.

Keywords : Phosphoric acid fuel cell, Cell performance, Electrode, Micro porous layer, Gas diffusion layer

1. 서 론

산업화 이후로 지속적인 화석연료 사용으로 인해 지구온난화 문제가 심화되고 있다.¹⁾ 이러한 문제를 해결하기 위해 전 세계적으로 탄소중립, RE100 정책과 같은 CO₂ 저감을 위한 여러가지 실행들을 확대하고 있으며 이와 더불어 신재생에너지 사용 확대에 대한 관심이 높아지고 있다.^{2,3)}

연료전지(Fuel cell)는 연료와 산화제의 전기화학적 반응으로 연료의 화학에너지를 전기에너지로 직접 변환하는 전기화학적 에너지 변환 장치로 CO₂ 배출이 적고 부산물로 물이 생성되어 친환경적인 신재생에너지원으로 주목받고 있다. 연료전지는 전해질의 종류에 따라 알칼리형 연료전지(Alkaline fuel cell), 인산형 연료전지(Phosphoric acid fuel cell, PAFC), 고분자 전해질 연료전지(Polymer electrolyte membrane fuel cell, PEMFC), 용융탄산염 연료전지(Molten carbonate fuel cell) 그리고 고체산화물 연료전지(Solid oxide fuel cell, SOFC)로 분류한다.⁴⁾

이 중에서 PAFC는 기술적 성숙도가 높으며 공간효율성이 우수하여 다양한 분야에 분산 발전용 전원으로 매우 적합하다.⁵⁾ 그러나 PAFC는 2000년대 초반에 개발한 전극 관련 기체확산층(GDL), 촉매 소재 및 전극 구조 기술을 계속 사용하고 있으며,^{6,7)} 추가적인 연구 개발을 거의 진행하지 않아 전극 촉매의 내산성, 전해질 관리, 촉매 소재 및 전극 구조 등 개선할 부분들이 여전히 남아있다.

PAFC 전극의 성능 향상을 위한 방법을 찾기 위해서 기술 개발에 대한 조사를 진행하였다. 선행 개발과 현행 기술에 대한 조사 결과에서 PAFC 전극에 MPL을 적용한 사례는 거의 찾을 수 없었다. 현재 발전용 연료전지로 상용화된 PAFC의 전극 기술은 1980년대부터 개발하여 2000년 초반에 거의 완성하여 현재 적용하고 있으므로 전극 개발 당시에는 미세다공층(MPL) 적용 개념이 정립되지 않은 것으로 판단된다.^{6,7)} 그러나 PAFC전극과 유사한 구조를 가진 고온 고분자 전해질 연료전지(High-temperature PEMFC, HT-PEMFC)에 MPL을 적용한 사례들이 있다.⁸⁻¹⁰⁾ HT-PEMFC에서의 전극은 고분자 전해질막에 인산을 함침하여 전해질로 사용한다는 점이 전해질로 인산을 사용하는 PAFC와 유사하다고 할 수 있다.

Bevilacqua 등은 HT-PEMFC 전극에 MPL을 적용하였을 때 인산의 거동과 영향에 대한 시뮬레이션 하는 연구를 진행하였다. 시뮬레이션 결과에서 MPL을 전극에 적용하였을 때 촉매층과 MPL 사이의 기공 크기 차이에 따른 모세관 현상 효과로 인해 인산이 전해질막 내부에서 촉매층을 거쳐 GDL로 유출되는 것이 감소하였다고 보고하였다. 또한 기공 크기가 더 작고 균열(Crack)이 없는 MPL이 전극 내부의 인산을 유지하는데 더 유리한 것으로 보고하였다.⁹⁾

Nanadegani 등의 연구에서는 HT-PEMFC 전극에서 MPL의 사용에 따른 열전달 및 물질 전달 특성과 3가지 과전압(활성화, 저항, 농도 과전압)을 시뮬레이션을 통해 계산하였다. 시뮬레이션 결과에서, 먼저 열전달 특성에서 MPL이 없을 때는 촉매층과 전해질 막 사이의 온도가 가장 높았으나 MPL을 적용하였을 때는 온도 분포가 더 균일해지고 막전극접합체(Membrane electrode assembly, MEA)에서의 온도 구배 또한 감소하였다. 그리고 물질 전달 특성에서 MPL을 적용하면 연료극에서 수소의 물질 전달이 개선되었으나 공기극에서 산소의 물질 전달은 큰 차이가 없는 것으로 나타났다. 마지막으로 MPL적용으로 3가지 과전압이 모두 감소하였으며, 특히 저항 과전압은 최대 130%가 감소하였는데 이는 HT-PEMFC에서 MPL이 전기화학적 성능에 중요한 역할을 하는 것을 알 수 있다.¹⁰⁾

본 논문에서는 액체 인산 전해질 관리 및 전극 성능의 향상을 위하여 PAFC의 전극에도 MPL을 적용하여 전기화학적인 성능에 미치는 영향에 대한 연구를 진행하였다. MPL이 PAFC 전극의 성능에 미치는 영향을 확인하기 위해 MPL이 없는 GDL과 MPL을 적용한 GDL을 사용한 전극을 사용한 각 단위전지의 내부 저항과 분극 곡선을 측정 및 서로 비교하였다. 또한 MPL이 없는 GDL과 MPL을 적용한 GDL을 사용한 전극의 미세 구조를 주사전자현미경(Scanning electron microscope, SEM)으로 관찰하였다. 마지막으로 전극의 성능 안정성을 평가하기 위해 단위전지에 대한 장기 운전 평가를 진행하였다.

2. 실 험

2.1 촉매 슬러리와 전극 제조

전극 제작에 사용할 촉매로서 연료극에 20 wt%

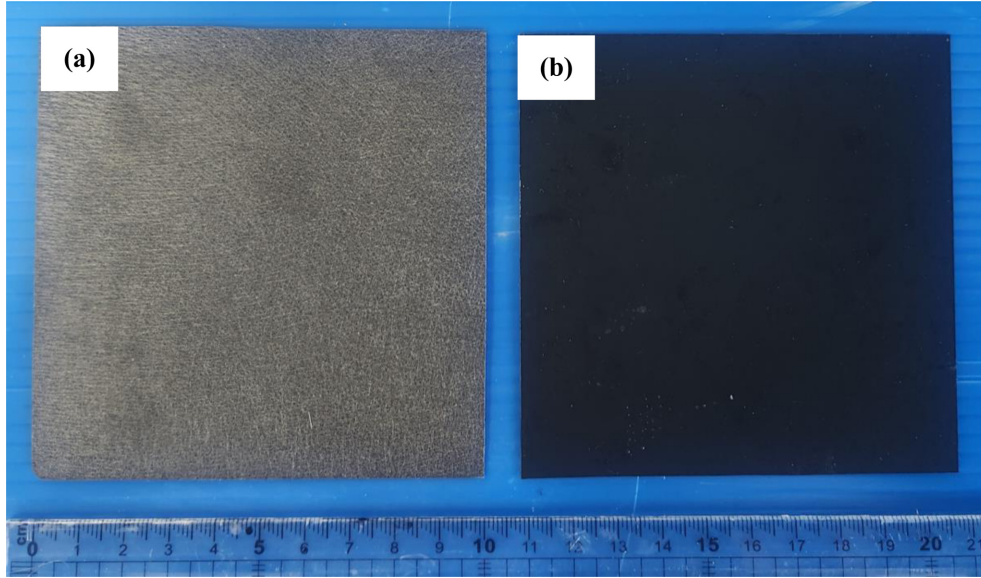


Fig. 1. Pictures of two types GDL of (a) JMP40 and (b) JMP40-EL1.

Table 1. Manufacturer's data sheet for the used MGP

Model	JMP40	JMP40-EL
Thickness (μm)	440 ± 20	460 ± 40
Basis weight (g/m^2)	220 ± 20	245 ± 15
Electric resistance ($\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$) @1 MPa	≤ 2	≤ 15
Air permeability ($\text{cm}^3/\text{cm}^2\cdot\text{s}$)	≥ 6	0.25 ± 0.1
MPL	X	O
Waterproof	X	O

Pt/C (Koreans RTX Co., Korea)와 공기극에 20 wt% Pt-Co/C (Koreans RTX Co., Korea)를 사용하였다. 결합제로는 PTFE 30-J (Du Pont-Mitsui Fluorochemicals Co., Japan)를 사용하였고 용매는 증류수와 Isopropanol을 1:1의 부피비로 혼합하여 사용하였다. GDL은 흑연화된 탄소종이(Molded graphite paper, MGP)를 사용하였고 MPL이 없는 GDL (JMP40, JNTG Co., Korea)과 MPL을 적용한 GDL (JMP40-EL1, JNTG Co., Korea)을 각각 사용하였다. Fig. 1은 2가지 GDL의 외형 사진을 나타낸 것이고 사용한 GDL의 특성은 Table 1에 각각 나타내었다. Fig. 1(b)를 보면 JMP40과 비교하여 JMP40-EL1은 MGP위에 카본 블랙이 코팅 되어있는 것을 확인할 수 있다.

촉매 슬러리를 제조하기 위하여 촉매와 결합제 및 용매를 각각 적정량 계량 후에 각각 첨가하였고 혼합물의 분산을 위해 초음파 분산기(H03-193-161, LK Lab Korea Co., Korea)로 1분간 초음파 분산한 후에

1시간 동안 마그네틱바를 사용하여 회전 교반하였다.

제조한 촉매 슬러리를 2가지 GDL 위에 각각 테이프 캐스팅 방식으로 코팅하였으며, 전극 촉매의 Pt담지량은 연료극에 $0.25 \text{ mg}_{\text{Pt}}/\text{cm}^2$, 그리고 공기극에 $0.5 \text{ mg}_{\text{Pt}}/\text{cm}^2$ 가 되도록 제어하였다. Tape-casting으로 코팅할 경우 코팅의 두께와 담지량을 쉽게 조절할 수 있고 기계식 공정으로 대량 생산이 가능하다.¹¹⁾ 촉매를 코팅한 전극을 100°C 전기로에서 불활성 가스(N_2) 분위기로 30분 동안 건조시켰다. 건조한 후 촉매층의 평탄화와 압착을 위해 롤 압연기(Yurim ENG Co., Korea)를 사용해 3회 압연하였고 촉매층의 결합력 부여를 위해 330°C 전기로에서 질소 분위기로 30분 동안 소결하여 전극을 제작하였다.

2.2 매트릭스 슬러리 제조와 매트릭스 코팅

매트릭스 재료로는 SiC 분말(Chemtree Co., Korea)를 사용하였으며, SiC 분말은 입도가 각각 3.0, 0.5 및 $0.2 \mu\text{m}$ 인 3가지 분말을 혼합하여 사용하였다.

매트릭스 제조에 사용한 결합제는 PTFE 30-J를 사용하였고 용매로서 증류수를 사용하였다.

매트릭스의 성능 향상을 위해 3가지 입도의 SiC분말을 혼합하였다. 혼합 분말의 충전 밀도를 비교분석하기 위해 탭밀도 측정기(BeDensi T1 Pro, Betterize, USA)를 사용하여 탭 밀도를 비교하고 분석하였다. 탭 밀도 분석은 분말에서 겉보기 밀도와 탭 밀도의 차이 비교하여 분말의 압축성(compressibility)과 흐름성(flow ability)을 측정할 수 있다.¹²⁾ 이때 탭밀도는 각각의 혼합 분말을 일정한 무게로 탭밀도 측정용 실린더에 계량한 후에 겉보기 부피(Bulk volume)를 기록하고 탭 밀도 측정기로 탭핑 속도 200 taps/min으로 1000회 탭핑하여 탭부피(Tap volume)를 측정하였다. 탭밀도를 측정할 분말의 혼합비율은 조립이 30–60 wt%, 중립은 10–20 wt%, 미립은 30–60 wt%의 범위에서 다양한 샘플을 준비하여 탭밀도를 분석하였다. 여기서 조립은 3.0 μm , 중립은 0.5 μm 그리고 미립은 0.2 μm 의 입도를 가진다.

이렇게 최적화된 분말을 불밀(BML-2, Daihan Scientific Co., Korea)을 이용하여 24시간 동안 혼합하였다. 매트릭스 슬러리는 SiC혼합물과 결합제 및 용매를 각각 적정량 계량하여 첨가하였고 1분간 초음파 분산시킨 후에 다시 1시간 동안 회전 교반하여 제조하였다.

제조한 슬러리는 미리 제작한 전극의 촉매층 위에 테이프 캐스팅 방법으로 약 150 μm 의 두께로 코팅하였다. 코팅한 매트릭스를 상온에서 하루 동안 건조한 후 압연기로 3회 압연하였다. 마지막으로 매트릭스층의 결합력 향상을 위해 330 $^{\circ}\text{C}$ 에서 30분간 소결하여 매트릭스를 제작하였다.

2.3 인산의 정제와 농축

일반적으로 시판되고 있는 인산의 농도는 85 wt%로 전해질의 더 높은 이온전도도를 위해 인산을 정제하고 농축하는 과정이 필요하다. 불순물 제거를 위해 85 wt% 인산과 34.5 wt% 과산화수소를 3:1의 부피비로 혼합하여 상온에서 2시간 동안 교반하였다. 그 후 진공 오븐을 이용해 과산화수소와 혼합한 인산을 100 $^{\circ}\text{C}$, 0.01 MPa의 진공상태에서 가열하여 과량의 물과 과산화수소를 증발시켜 농축하였다. 이때 인산의 pyrophosphate 또는 poly-phosphate와 같은 폴리머의 형성을 방지하기 위해 100 $^{\circ}\text{C}$, 진공 조건을 유지하였다.¹³⁾

2.4 단위전지 체결

제작한 매트릭스 전극에 농축한 인산을 함침하여 매트릭스와 촉매층 내부에 전해질을 채웠다. 단위전지는 엔드 플레이트, 집전체, 분리판, 연료극, 전해질 매트릭스, 공기극, 분리판, 집전체, 엔드 플레이트 순서로 적층하였으며, 전극과 매트릭스의 가장자리를 Teflon 가스켓으로 밀봉하였다. 그 후 엔드 플레이트의 가장자리를 볼트와 너트로 250 kg/cm²의 체결압으로 체결하였다. 제작한 단위전지의 전극 활성 면적은 100 cm²이다.

2.5 전극과 단위전지의 특성 분석 방법

2가지 MPL의 표면 미세 구조는 SEM (Regulus 8220, Hitachi Co., Japan)으로 분석하였고 가속전압 10 kV로 하였다. 전극의 접촉 저항을 측정 및 비교하기 위해 저항 측정기(BT3554-50, Hioki Co., Japan)를 사용하여 내부 저항(Internal resistance)을 측정하였다.

연료전지의 성능을 비교하기 위해 연료전지 평가 장비(Fuel cell station, KWT Co., Korea)를 사용하여 분극 곡선(Polarization curve)을 측정하였다. 성능 측정에는 전극 활성 면적이 100 cm²인 단위전지를 사용하였고, 단위전지의 연료극과 공기극에는 수소를 1,400 cm³/min 그리고 공기는 10,000 cm³/min을 각각 공급하였으며, 전지 작동 온도는 180–190 $^{\circ}\text{C}$ 로 하였다. 전극의 성능 평가를 진행하기 전에 전극의 활성화를 위해 전압을 0.4–0.8 V 범위에서 30초 간격으로 부하를 변화시키는 활성화 과정을 총 20 사이클 반복하였다.

제작한 단위전지의 안정성을 평가하기 위해 0.65 V에서 정전압(CV)으로 장기 운전 시험을 진행하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 매트릭스 제조용 SiC 분말의 충전 밀도

최적화된 매트릭스를 제작하기 위하여 3가지 입도의 SiC 분말을 중량비로 10–60 wt% 범위에서 조정하여 혼합 분말을 제작하였고, 이 때 사용한 3가지 SiC 분말은 조립, 중립 및 미립 분말이며, 이들의 평균 입도는 각각 3.0, 0.5 및 0.2 μm 이다. 탭 밀도 분석 결과에서 조립/중립/미립의 혼합 중량비가 50:10:40, 40:10:50, 40:20:40, 50:20:30, 60:10:30, 30:20:50 및 30:10:60일 때, Carr's index는 각각 0.271, 0.255, 0.255, 0.256, 0.312, 0.178 및 0.264였다. 이러한 탭 밀도 분석에서 조립/중립/미립의 혼합 중량비가 60:10:30인 시료의 Carr's index가 0.312로 가장 높았다. Carr's index(I_C)는 분말의 흐름성을 나타내는 지표로 식(1)과 같이 계산하였다.¹²⁾

$$I_C = (V_B - V_T) / (V_T) \quad \text{식(1)}$$

여기에서, I_C =Carr's index, V_B =Bulk volume 및 V_T =Tap volume이다.

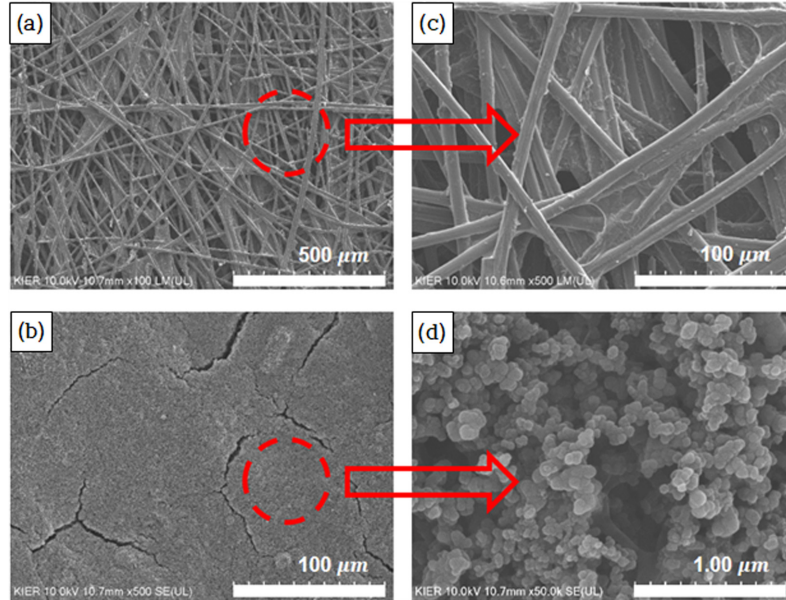


Fig. 2. SEM images with two types GDL of (a) JMP40 and (b) JMP40-EL1 (enlarged images: (c) JMP40 and (d) JMP40-EL1).

Carr's index는 분체의 흐름성이 낮을수록 높은 index 값을 나타내기 때문에,¹²⁾ Carr's index가 높을수록 분말의 충전이 더 치밀하고 충전 밀도가 높은 것을 의미한다. PAFC의 전해질 매트릭스로서 적합하다고 판단할 수 있다. 본 연구에서는 매트릭스 제조를 위한 3가지 SiC 분말, 즉 조립/중립/미립의 혼합 중량비가 60:10:30인 것을 매트릭스 제조를 위한 최적 혼합비로 선택하였다. SiC 분말의 혼합비에 따른 매트릭스의 특성과 연료전지 적용에 대한 연구도 현재 진행하고 있다.

3.2 MPL 유무에 따른 미세구조 분석

MPL이 없거나(JMP40) MPL을 적용한(JMP40-EL1) 2가지 GDL은 SEM을 이용하여 각각의 표면 미세구조를 관찰하고 비교하였다. Fig. 2(a,b)는 이들 2가지 GDL 표면의 SEM 사진을 나타낸 것이다. Fig. 2(a)에 나타낸 MPL을 적용한 GDL은 표면에 부분적으로 균열을 관찰할 수 있으나 비교적 표면이 균일한 것을 확인할 수 있으며, 이를 확대한 MPL 표면의 SEM 사진(Fig. 2(c))에서는 입경이 0.05–0.1 μm 정도인 미세한 카본 입자와 미세 기공을 확인할 수 있다. MPL에 균열이 많거나 조직이 불균일한 경우에는 전해질의 누출을 초래하거나 전극의 삼상계면이 감소할 수 있는데^{9,14)} MPL을 적용한 GDL의 표면에는 균열이 적고 미세구조도 균일한 것으로 보아 이러한 문제는 발

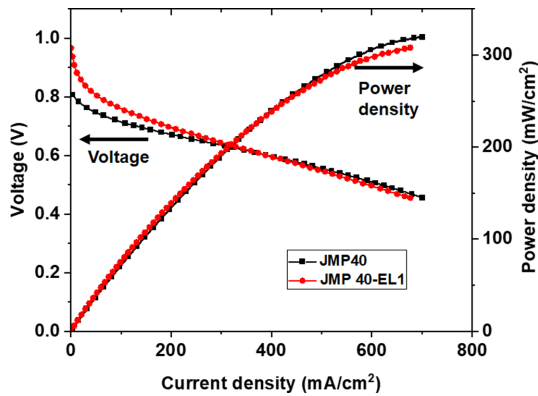
생하지 않을 것으로 판단된다. 그러나 MPL이 없는 GDL의 표면을 관찰한 SEM 사진(Fig. 2(b))에서는 GDL을 구성하는 탄소 섬유들이 얽혀있는 것을 볼 수 있고, 이를 확대한 GDL 표면의 SEM 사진(Fig. 2(d))에서는 직경이 약 10 μm 정도인 탄소 섬유와 수십 μm 정도의 큰 기공들을 관찰할 수 있으며, MPL을 적용한 GDL 표면에 비해 큰 기공들이 많은 것을 확인할 수 있었다. 미세구조 분석의 결과에서 MPL을 적용한 GDL은 표면에 균열이 적고 표면의 기공들도 아주 미세한 것을 알 수 있다.

3.3 MPL 적용에 따른 전기화학적 성능 비교

MPL이 전극의 성능에 미치는 영향을 확인하기 위해 MPL이 없거나(JMP40) MPL을 적용한(JMP40-EL1) 전극 2가지로 각각 제작한 단위전지의 내부 저항과 분극 곡선을 서로 비교하였다. Fig. 3은 이들 2가지 단위전지의 성능을 비교한 분극 곡선이고, Fig. 3의 분극 곡선에서 얻은 각각의 성능과 내부 저항을 Table 2에 나타내었다. Table 2에서 MPL을 적용하면 계면 저항을 나타내는 내부 저항이 7.9 mΩ에서 1.9 mΩ으로 약 76%가 감소한 것을 확인하였고, 0.65 V에서 출력 밀도는 170.2 mW/cm²에서 192.1 mW/cm²로 약 13%가 향상된 것을 확인하였다. 출력 밀도를 0.65 V에서 비교한 것은 PAFC 스택을 실제 작동할 때 운전 전압을 약 0.70–0.65 V의 고전압 범위에서 운전하

Table 2. The performance of single cell using of GDL with MPL and without MPL

Model	OCV (V)	Internal resistance (mΩ)	Power density (mW/cm ²) (@0.65V)
JMP40	0.867	7.8	170.2
JMP40-EL1	0.967	1.9	192.1

**Fig. 3. Polarization curve of a single cell using of GDL with and without MPL.**

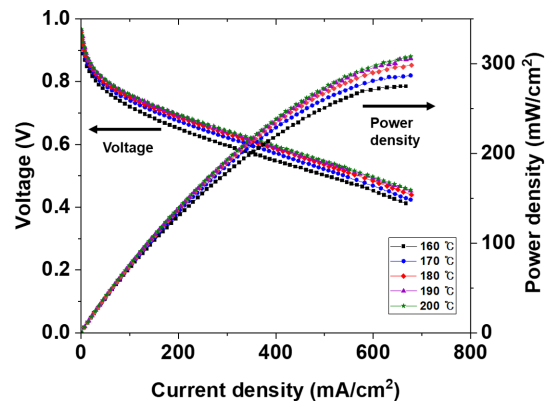
므로 이 전압 범위에 속하는 운전 전압인 0.65 V로 정하였다.

Fig. 3의 분극 곡선에서 MPL이 없거나(JMP40) MPL을 적용한(JMP40-EL1) 전극 2가지로 각각 제작한 단위전지의 출력 밀도는 전압 0.7 V에서 각각 91.8과 135.5 mW/cm², 0.65 V에서 각각 170.2와 192.1 mW/cm², 0.6 V에서 각각 239.2와 240.1 mW/cm² 그리고 0.5 V에서 각각 309.4와 297.8 mW/cm²였다. 단위전지의 성능이 전압 0.7 V까지는 MPL을 적용한(JMP40-EL1) 전극의 출력 밀도가 MPL이 없는(JMP40) 전극의 출력 밀도보다 높지만 (43.7 mW/cm²), 0.6 V에서는 서로 비슷하고 그 이하의 전압에서는 MPL을 적용한(JMP40-EL1) 전극의 출력 밀도보다 MPL이 없는(JMP40) 전극의 출력 밀도가 조금 높게(11.6 mW/cm²) 나타났다. 즉, 0.6 V 이상의 고전압 영역에서는 전극의 성능에 MPL이 큰 영향을 미치고 0.6 V 이하의 저전압 영역에서는 MPL이 큰 영향을 미치지 않는 것으로 판단된다.

MPL을 적용하면 고전압 범위에서 연료와 산화제의 확산과 생성수 배출이 쉬워지고 전극 계면에서의 접촉 저항이 감소하여 성능이 향상된 것으로 판단된다. 또한 MPL의 적용으로 전극 내부의 온도가 균일해지고 열 전달 향상으로 인해 물질 전달 속도가 증가¹⁵⁾하여 기체 투과도 또한 향상되었을 것으로 판단된다.

3.4 작동 온도에 따른 전지 성능 최적화

MPL을 적용한 전극으로 제작한 단위전지의 작동 온도에 따른 성능 변화를 관찰하기 위하여 작동 온도를 160–200 °C로 변화시켜 단위전지의 성능을 비교하였다. Fig. 4은 작동 온도에 따른 단위전지의 분극 곡선을 나타낸 것이고, Fig. 4의 분극 곡선에서 얻은 작동 온도에 따른 성능을 Table 3에 나타내었다. Table 3에서 작동 온도가 160 °C에서 190 °C까지 증가할수록 성능이 증가하는 것을 볼 수 있지만 작동 온도가 190 °C에서 200 °C까지 증가하여도 성능 증가는 크지 않았다. 위 결과를 고려하여 180–190 °C를 최적의 작

**Fig. 4. Polarization curve of a single cell using of GDL with MPL according to operating temperature.****Table 3. Performance of a single cell using of GDL with MPL according to operating temperature**

Operating Temp (°C)	OCV (V)	Internal resistance (mΩ)	Voltage (V) (@300 mA/cm ²)
160	0.93	1.9	0.60
170	0.95	1.9	0.63
180	0.95	1.9	0.65
190	0.96	1.9	0.66
200	0.97	1.9	0.66

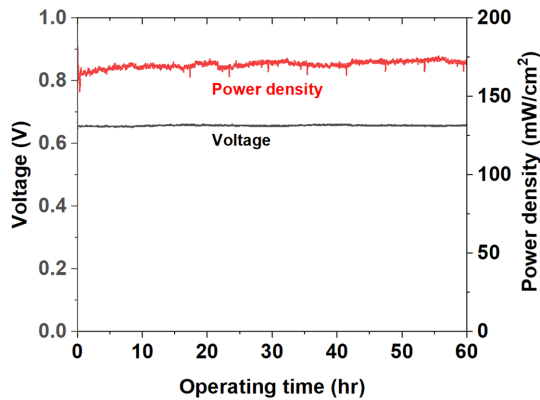


Fig. 5. Graph of long-term operating test of a single cell using of GDL with MPL.

동 온도로 설정하였다. 200 °C 이상의 고온에서 운전할 경우 높은 온도로 인해 전해질인 인산이 빠르게 증발하여 매트릭스 속의 전해질 고갈되어 성능저하가 발생할 수 있기 때문에¹⁰⁾ 최적 작동 온도를 180–190 °C로 결정하였다. 온도 증가에 따른 성능 향상은 전해질 저항 감소 및 전극 계면의 저항 감소로 인한 것으로 판단된다.¹⁶⁾

3.5 장기 운전 특성 평가

MPL을 적용하여 제작한 전극의 장기 안정성을 평가하기 위해 장기 운전을 진행하였다. 장기 운전 시험에 사용한 단위전지는 MPL을 적용한 전극을 사용하였고 0.65 V의 정전압(CV, Constant Voltage) 모드로 약 60 시간 동안 운전하였다. Fig. 5는 장기 운전 그래프를 나타내고 60 시간 운전하는 동안에 평균적으로 약 170 mW/cm²의 출력 밀도를 일정하게 유지하며 안정적인 성능을 유지하였다. 이는 MPL 적용으로 인하여 생성수의 배출이 쉬워지고 매트릭스 속의 전해질 관리 및 연료/산화제 확산 특성이 향상되었기 때문으로 판단된다.

4. 결 론

본 연구에서는 PAFC 전극에서 전극의 MPL이 전극 성능에 미치는 영향을 조사하였다. MPL이 없는 GDL과 MPL을 적용한 GDL을 비교하기 위해 두가지 GDL의 표면 미세구조를 관찰하였고 각각의 GDL을 적용하여 제작한 전극의 전기화학적 성능을 비교하였다. 또한 MPL이 없거나 적용한 전극의 전기화학적 성능을 비교하였을 때 내부 저항이 크게 줄어드는 것을 확인할 수 있었고 MPL을 적용하면 전압 0.65 V에서

출력 밀도가 170.2 mW/cm²에서 192.1 mW/cm²으로 향상되는 것을 알 수 있었다. 또한 장기 운전 시험 결과에서 약 60 시간 운전하는 동안 평균적으로 약 170 mW/cm²의 출력 밀도를 보여주었고 성능저하 없이 비교적 일정하게 성능을 유지하였다. PAFC 전극에 MPL을 적용하면 전극 계면에서의 접촉 저항을 감소시켜주고 PAFC의 성능 향상에도 도움이 되는 것을 확인하였다. 따라서 PAFC 전극에 MPL을 적용하면 전극의 성능 향상과 물관리 및 연료/산화제 확산 등 여러가지 문제점을 해결할 수 있는 중요한 구성부품으로 작용할 수 있을 것으로 판단된다.

감사의 말

이 연구는 2023년도 산업통상자원부 및 산업기술평과관리원(KEIT) 연구비 지원에 의한 연구임(20020400).

참고문헌

1. K. O. Yoro and M. O. Daramola, CO₂ emission sources, greenhouse gases, and the global warming effect, In: *Advances in Carbon Capture*, pp. 3–28, Woodhead Publishing, Duxford (2020).
2. F. Wang, J. D. Harindintwali, Z. Yuan, M. Wang, F. Wang, S. Li, (...), and J. M. Chen, Technologies and perspectives for achieving carbon neutrality, *The Innovation*, **2(4)**, 100180 (2021).
3. S. H. An and J. Woo, Comparative economic analysis of RE100 implementation methods in South Korea, *Current Photovoltaic Research*, **10(2)**, 62–71 (2022).
4. R. O'hayre, S.-W. Cha, W. Colella, and F. B. Prinz, *Fuel cell fundamentals*, pp. 9–12, John Wiley & Sons, New York (2016).
5. J. C. Yang, Y. S. Park, S. H. Seo, H. J. Lee, and J. S. Noh, Development of a 50 kW PAFC power generation system, *J. Power Sources*, **106(1-2)**, 68–75 (2002).
6. K. H. Yoon, J. Y. Choi, J. H. Jang, and C. S. Kim, Effect of preparation methods of a matrix retaining electrolyte on the characteristics of a phosphoric acid fuel cell, *J. Korean Ceram. Soc.*, **34(12)**, 1205–1212 (1997).
7. T. T. Aindow, A. T. Haug, and D. Jayne, Platinum catalyst degradation in phosphoric acid fuel cells for stationary applications, *J. Power Sources*, **196(10)**, 4506–4514 (2011).
8. S. Liu, K. Wippermann, and W. Lehnert, Mechanism of action of polytetrafluoroethylene binder on the performance and durability of high temperature polymer electrolyte fuel cells, *Int. J. Hydrogen Energy*, **46(27)**, 14687–14698 (2021).
9. N. Bevilacqua, M. G. George, S. Galbiati, A. Bazylak, and R. Zeis, Phosphoric acid invasion in high temperature PEM fuel cell gas diffusion layers,

- Electrochim. Acta*, **257**, 89-98 (2017).
10. F. S. Nanadegani, E. N. Lay, and B. Sunden, Computational analysis of the impact of a micro porous layer (MPL) on the characteristics of a high temperature PEMFC, *Electrochim. Acta*, **333**, 135552 (2020).
 11. S.-G. Kang, Y.-C. Park, S.-K. Kim, S.-Y. Lim, D.-H. Jung, J.-H. Jang, and D.-H. Peck, Performance of membrane electrode assembly for DMFC prepared by bar-coating method, *J. Korean Electrochem. Soc.*, **11(1)**, 16-21 (2008).
 12. K. Traina, R. Cloots, S. Bontempi, G. Lumay, N. Vandewalle, and F. Boschini, Flow abilities of powders and granular materials evidenced from dynamical tap density measurement, *Powder Technol.*, **235**, 842-852 (2013).
 13. D. T. Chin and H. H. Chang, On the conductivity of phosphoric acid electrolyte, *J. Appl Electrochem*, **19(1)**, 95-99 (1989).
 14. Y. W. Kim and J. S. Lee., Manufacture of SiC matrix for PAFC, *J. Energy Eng.*, **2(2)**, 187-193 (1993).
 15. S.-S. Han, P.-H. Lee, J.-Y. Lee, C.-S. Park, and S.-S. Hwang, Heat transfer by heat generation in electrochemical reaction of PEMFC, *J. Korean Electrochem. Soc.*, **11(4)**, 273-283 (2008)
 16. R.-H. Song, C.-S. Kim, and D.-R. Shin, AC impedance study of oxygen electrode in phosphoric acid fuel cell, *J. Korean Electrochem. Soc.*, **3(4)**, 191-195 (2000).