

금속분리판을 이용한 고분자 전해질 연료전지의 성능에 관한 연구

전의식, 조은애, 하홍용, 홍성안, 오인환
한국과학기술연구원 연료전지연구센터

A Study on the performance of PEMFC using metal bipolar plates

U.-S. Jeon, E.A. Cho, H.-Y. Ha, S.-A. Hong, I.-H. Oh
Fuel Cell Research Center, Korea Institute of Science and Technology

서론

고분자 전해질 연료전지 (proton exchange membrane fuel cell; PEMFC)는 수소이온교환 특성을 갖는 고분자막을 전해질로 사용하는 연료전지로서 다른 형태의 연료전지에 비하여 효율이 높고 시동시간이 짧은 동시에 부하변화에 대한 응답특성이 빠르며 무공해 발전 장치로서 분산형 발전, 무공해 자동차 동력원, 이동형 전원, 우주선 동력원, 군사용 전원 등에 응용될 수 있는 차세대 발전장치이다. 이러한 우수한 특성의 연료전지가 상용화되기 위해서는 전지의 제조가격과 스택의 부피 및 무게를 낮추어야 하며 일례로 자동차를 위한 50kW 시스템에서 목표하는 소요비용은 kW당 40\$이하 그리고 무게는 133kg 이하이다[1]. 이러한 조건을 맞추기 위해서는 현재 연료전지 제작비용의 60% 이상을 차지하는 분리판을 값싸게 제작할 수 있는 방법이 개발되어야 한다.

연료전지에서 분리판은 anode에서 생성된 전자를 cathode 쪽으로 전도해주는 집전판 역할과, MEA를 지지해주고, anode 및 cathode 쪽으로 각각 연료와 산화제를 공급해주는 통로를 제공해 주는 동시에, 전지운전 중에 생기는 물을 제거해주는 통로 역할을 한다. 따라서 가장 이상적인 분리판은 전기전도성, 밀폐성, 내부식성, 견고성이 우수하고 얇고 가벼우며 가공성이 좋아야 한다. 현재 가장 많이 사용되고 있는 분리판의 재질은 graphite로서, 전기전도성과 내부식성이 뛰어나고 밀도가 낮아 경량의 스택 제작이 가능하다. 그러나 graphite는 기공이 많아 가스 투과도가 높으므로 반응가스의 혼합을 막기 위해 레진의 함침과 함께 일정한 두께가 요구되며 결과적으로 스택의 부피가 커지게 된다. 또한 깨어지기 쉽고, 성형시 기계가공을 거쳐야하므로 제조가격이 비싸며 대량생산이 어려운 단점이 있다. 따라서 현재 분리판에 대한 연구의 초점은 가격이 싸며 가공이 쉬운 재료를 이용하여 제조 단가를 낮출 수 있는 방향으로 진행중이다. 이에 고분자/탄소 복합체를 이용한 복합분리판과 전기저항이 작은 금속분리판의 두 가지 방법으로 나눌 수 있다[2].

본 실험에서는 재료비가 싸고 공식저항이 우수하며 기계적 특성이 좋은 것으로 알려진 오스테나이트계 316 스테인레스강(SUS 316) 분리판을 사용하여 제작한 연료전지의 특성을 살펴보고자 하였다.

실험

금속분리판 재료로 사용된 SUS316의 압력에 따르는 접촉저항을 살펴보기 위하여 SUS316을 1cm² 크기로 잘라 측정용 셀에 위치시킨 후 접촉저항 변화를 측정하였다. 이때 SUS316의 접촉저항을 다른 물질과 비교하기 위하여 같은 실험을 graphite와 carbon/resin composite(SGL)에 대하여 반복하였다. 접촉저항측정은 milliohmmeter (HP4338A)를 이용하

였으며 측정전류는 10mA로 하였다.

SUS316을 이용한 단위전지 성능평가를 위해 두께 8mm, 크기 120x120mm², 그리고 유효전극면적이 25cm²인 분리판을 제작하였다. 이때 사용된 전해질은 Dupont사의 Nafion115 막을 사용하였으며 전극은 전해질막에 촉매층을 직접 코팅함으로써 제조하였다. 이때 백금촉매의 loading 량은 각각 anode=0.4mg/cm², cathode=0.7mg/cm²로 하였고 기체확산층으로는 발수 처리된 carbon cloth (Toray)를 사용하였다. 이와같이 하여 제작된 단위전지의 운전온도는 80℃, 운전압력은 상압으로 하였으며, 반응가스의 유량은 stoichiometry로 수소의 경우 1.5, 산소의 경우 3으로 하였다.

25cm² 단위전지의 운전결과를 바탕으로 Fig. 1에 보이는 것과 같은 대면적 단위전지를 제작하였다. 대면적 단위전지에 사용된 분리판의 두께는 1.5~3mm, 유효전극면적은 240cm²이었으며, 사용된 MEA는 25cm² 단위전지용 MEA와 같은 방법으로 제조하였다. Electronic loader (Deagil electronics, EL 500P)를 이용하여 cell voltage와 current를 측정함으로써 전지의 성능을 살펴보았다. 또한 단위전지 내의 MEA 분극저항을 측정하기 위해 IM6 (ZAHNER)를 사용하여1mHz부터 100kHz의 주파수 범위에서 impedance를 측정하였다. 이때 기준전극이자 상대전극으로 수소전극을 사용하였고, 교류전압의 진폭은 5mV로 하였으며 작업전극에 일정 DC 포텐셜을 걸어준 상태에서 측정하였다.

결과 및 토론

Fig. 2는 분리판으로 사용되는 여러 재질에 대한 compression force에 따른 접촉저항 측정결과를 나타낸 것이다. 동일 compression force에서 접촉저항은 graphite<composite<SUS 316의 순으로 높은 수치를 나타내어 SUS316이 가장 높은 것으로 나타났다. 이와 같이 SUS316의 접촉저항이 크게 나타나는 이유는 부식저항을 높이기 위해 첨가된 Cr(17%)과 Mo(2.5%)이 저항성분으로 작용하였으며 표면의 금속산화물에 의한 passive layer가 생성되었기 때문인 것으로 판단된다. 또한 SUS316에 가하는 압력이 증가할수록 지속적으로 저항이 낮아지며 300N/cm²에서는 SGL사의 복합분리판의 접촉저항에 근접하는 결과를 보이고 있다. 그러나 전지 제작시 과도한 체결압은 MEA나 기체확산층으로 사용되는 carbon cloth를 손상시킬 수 있으며 전해질과 전극사이의 분리를 유도함으로써 전지의 성능감소를 일으킬 수 있다. 따라서 MEA를 보호하고 전지성능을 높이기 위한 한계체결압이 존재하며 SUS316의 경우 어느 정도의 접촉저항을 피할 수 없을 것으로 판단되었다.

Fig. 3은 SUS316 분리판과 graphite 분리판에 의해 제작된 단위전지의 성능곡선을 비교한 그림이다. 0.6V를 기준으로 하였을 때 graphite의 경우 전류밀도 및 출력밀도는 912 mA/cm² 및 547mW/cm²이었으며 SUS316의 경우는 660 mA/cm² 및 396mW/cm²이었다. 또한 Fig. 4의 Impedance 측정결과에서 보이는 바와 같이 graphite의 물질저항(R_{Ω})이 0.0071 Ω cm²인 것에 비해 SUS316은 이보다 높은 0.0136 Ω cm²을 보임으로서 약 두배 정도의 저항차이를 나타내었다. 이와 같이 금속분리판 전지가 graphite 전지보다 성능이 낮고 물질저항이 큰 이유는 SUS 표면이 산성전해질에 노출되어 표면의 철(Fe)만 선택적으로 부식/용출되어 Cr-rich표면을 만들게 되고, 이 표면의 Cr이 치밀한 Cr₂O₃로 산화되어 passive layer를 형성, 저항의 원인으로 작용하기 때문이다. 이러한 passive layer는 산성분위기에서 잘 형성되기 때문에 전지의 구조상 Nafion과 직접 접촉하는 가스켓과 전극 사이의 공간

에서 가장 크게 발생하게 된다. 또한 산소와의 산화반응이 일어나는 cathode 쪽에서 많이 발생하여 성능 저하의 원인으로 작용하게 되며 내구성을 떨어뜨리는 결과를 초래한다. 따라서 이러한 SUS316의 단점을 해결하기 위해서는 SUS316 표면에 noble metal을 코팅함으로써 내구성 및 전도도를 높여야 하며 현재 이에 대한 연구가 진행중이다.

Fig. 5는 유효전극면적이 240cm^2 인 대면적 단위전지의 i-V 성능곡선이다. 0.6V에서의 전류밀도가 graphite의 경우 약 $429\text{mA}/\text{cm}^2$ 인 것에 비해 SUS316은 약 $235\text{mA}/\text{cm}^2$ 를 나타내었으며, 이때 0.6V에서의 출력은 33.78W, 최대출력은 0.45V에서 45.3W였다. 전지성능이 대면적화 함에 따라 단위전지에 비해 감소하는 것은 유로가 단위전지 보다 길고 금속의 표면의 젖음성에 따른 flooding 현상과, 분리판 제작과정에서 생긴 접촉저항의 증가, 그리고 단위전지에 비해 고르지 못한 체결압이 그 원인인 것으로 판단되며 이에 대한 보완 연구가 진행중이다. 한편 graphite와 SUS316에 따르는 부피당 출력밀도를 Table 1에 비교하였다.

Table 1. Volumetric power densities of the graphite and SUS316 single cells. (without header)

Materials	Graphite	SUS316
Volume (cm^3/piece)	300	144
Volumetric Power Density (mW cm^{-3})	206	235

참고문헌

1. T. M. Besmann, J. W. Klett, J. J. Henry, Jr., and E. Lara-Curzio, *J. of the Electrochemical Society*, 147 (11), 4083 (2000).
2. D. N. Busick and M. S. Wilson, *Fuel Cells Bulletin*, 2 (5), 6 (1999).



Figure 1. 240cm^2 single cell using the SUS316 plates.

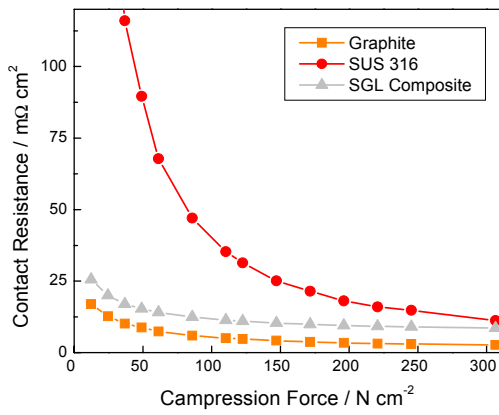


Figure 2. Variation in contact resistance dependency on compression force.

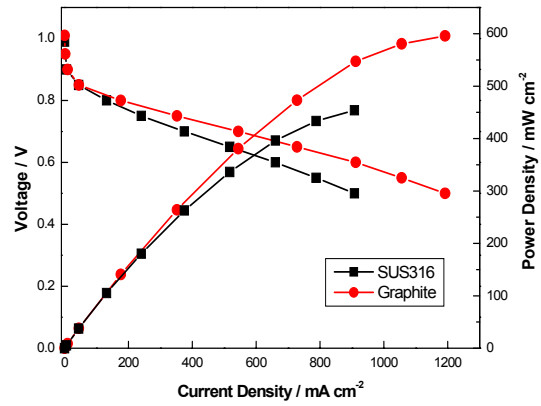


Figure 3. i-V characterization of single cell (active electrode area=25cm²) using graphite and SUS316 plates.

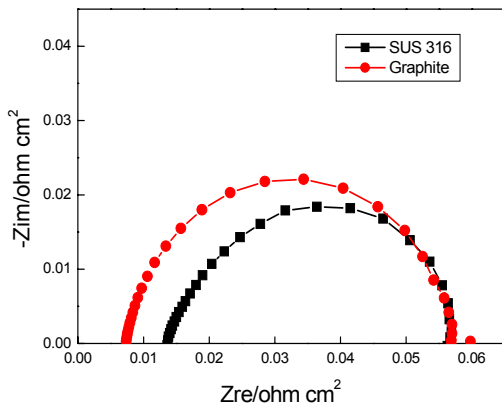


Figure 4. Nyquist plots of the graphite and SUS316 single cell at 0.85V.

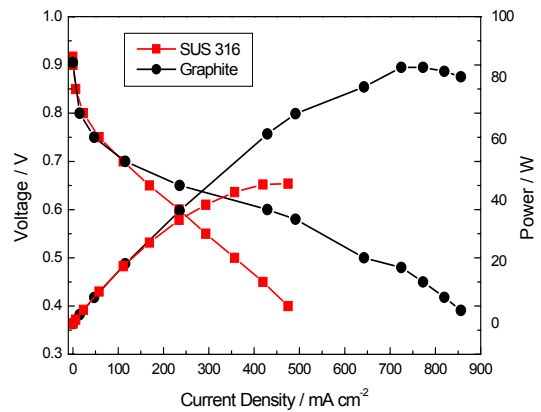


Figure 5. i-V characterization of single cell (active electrode area=240cm²) using graphite and SUS316 plates.