

# 전도성 복합재료를 이용한 PEMFC용 separator 사출성형 제조 및 전기전도성 평가

윤용훈<sup>1</sup>, 임승현<sup>1</sup>, 김동학<sup>1\*</sup>  
<sup>1</sup>순천향대학교 나노화학공학과

## Fabrication of PEMFC separators with conducting polymer composites by injection molding process and evaluation of moldability and electrical conductivity of the separators

Yong-Hun Yoon<sup>1</sup>, Seung-Hyun Lim<sup>1</sup> and Dong-Hak Kim<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Dept of Chemical Engineering SoonChunHyang University

**요약** 본 논문은 매트릭스 수지로 PPS(Poly(phenylene sulfide))와 PP(Polypropylene)를 사용하였으며, 물리적 및 화학적 특성을 증대시키기 위해 주 첨가제로는 팽창 흑연, 합성 흑연과 보조 첨가제로는 유리 섬유, 카본 섬유, 카본 블랙을 사용하여 총 3가지의 복합소재를 제조하였다. 제조한 복합소재를 이용하여 사출 성형 및 평가 전에 CAE(Computer Aided Engineering)해석 프로그램을 통하여 해석을 하였으며, 사출성형을 통하여 사출조건(사출 압력, 가열시간, 금형온도 등)을 최적화하였다. 일반 사출성형의 경우 온도의 제한과 성형성의 한계가 있어 유용성이 낮은 복합소재의 경우 사출성형이 어렵기 때문에 이를 보완하기 위해 E-MOLD와 사출압축 기능을 함께 사용하여 복합소재의 성형성을 향상 시켰다. 사출 성형 된 각각의 최종 시편을 four point probe 장치를 사용하여 전기전도도를 측정/비교 하였고, 3가지 복합소재 중 PP/SG/CB를 혼합하여 제조한 복합소재가 성형성 및 전기전도도가 우수한 것을 확인 하였다.

**Abstract** This research aims to develop polymer composites which can be used for PEMFC separators by injection molding process. Considering the moldability and stiffness, we used PPS(Poly(phenylene sulfide)) and PP(Polypropylene) as base resin. In order to improve electrical conductivity and physical properties, we chose glass fiber, carbon fiber, carbon black, and both expanded graphite and synthetic graphite. The 3 type composites are prepared for injection molding of PEMFC separators. and CAE(Computer Aided Engineering) analysis was conducted to optimize injection processing parameters(injection pressure, heat time, mold temperature etc.). We did successfully fabricate the separators by injection molding, and measure the electrical conductivity of the samples by using four point probe device. Conclusively, PP/SG/CB composite showed better both electrical conductivity and moldability than the others.

**Key Words** : PEMFC, Separator, Injection Molding, Compression Injection Molding, E-MOLD, CAE Analysis

### 1. 서론

연료전지는 20세기에 들어와서 화석 연료의 사용량 증가에 따른 환경오염으로 인해 최근 지구 온난화를 방지하기 위한 미래의 친환경 대체 에너지원으로 관심이

증가되면서 활발한 연구가 시작되었다. 기존 에너지 보다 40%이상 효율이 높고, 연료 사용량은 적으며 SO<sub>x</sub>, NO<sub>x</sub> 등 환경 오염물질을 거의 배출하지 않고, 소음 또한 적다. 이와 같은 가치와 앞으로의 가능성을 인정받아 선진국을 중심으로 연구가 활발히 진행되고 있으며 현재는 중·소형

본 연구는 교육과학기술부와 한국산업기술진흥원의 지역혁신인력양성사업으로 수행된 연구결과입니다.

\*교신저자 : 김동학(dhkim@sch.ac.kr)

접수일 09년 12월 30일

수정일 10년 01월 29일

게재확정일 10년 04월 09일

발전시스템, 전기자동차용, 휴대 전자 장비용 및 가정용 등의 다양한 범위로 응용 연구가 진행되고 있다.

현재 많은 연구가 진행 중인 PEMFC(Proton-exchange membrane fuel cell)는 수소이온교환특성을 갖는 고분자막을 전해질로 사용하는 연료전지이다. 높은 에너지 밀도를 가지고 높은 에너지 효율, 낮은 작동온도(80℃)등 소형발전 시스템, 가정용 연료전지 및 자동차 분야에 폭넓게 사용 될 수 있다.

현재 PEMFC를 상용화하기 위하여 제조 원가를 절감하려는 노력이 활발하게 진행되고 있다. 그 중 PEMFC에서 60%에 해당하는 무게 비중과 30%에 해당하는 가격 비중을 차지하고 있는 분리판을 상용화하기 위해 많은 복합소재와 성형법이 연구되어지고 있다. 초기에 연구된 흑연 분리판의 경우 깨지기 쉽고 두께를 줄이기 어려웠으며 가공 시간이 오래 걸려 비용이 많이 소요되었고, 금속을 이용할 경우에는 밀도가 높고 가공비용이 많이 들며 부식에 약한 단점이 있었다.[1]

이러한 단점을 보완하기 위해 흑연과 같은 전도성이 뛰어난 탄소계열의 충전제를 고분자와 혼합하여 복합소재를 제조하는 연구가 수행되고 있다. 전기 전도성 고분자 복합재는 전도성 성능에 영향을 미친다. 복합재를 이용하여 성형한 분리판은 제작이 쉽고, 경량화가 가능하며 제조공정이 간단하여 제조시간을 줄일 수 있다. 카본 충전제(흑연, 카본 블랙, 카본 섬유) 50~80 wt%와 매트릭스 고분자가 혼합되어야 전도도가 증가하는 것을 볼 수 있으며, flake 형태의 흑연이 혼합 되었을 때 전도성 네트워크가 잘 이루어지는 것을 볼 수 있다.

현재 분리판을 제조하는데 대부분 압축성형공정을 사용하고 있으며, 이를 사출성형공정으로 대체하기 위해 많은 연구가 진행되고 있다. 사출성형은 분리판을 제조하는데 중요한 방법이며, 사출성형의 요소는 분리판의 전기전도도에 영향을 미친다. 높은 용융 온도, 높은 금형 온도, 높은 보압은 전기전도도를 증가시키고 높은 사출 속도는 전기전도도를 감소시킨다. 그리고 섬유의 배향과 분산정도에 따라라도 전기전도도에 영향을 미치게 된다. 섬유의 배향을 제어할 수 있다면 전기전도도는 증가 하게 된다.[2]

사출성형공정은 제품을 저비용으로 대량 생산할 수 있는 장점이 있지만 금형 제작 후에도 제품을 생산하기 까지 금형 수정이 빈번하게 요구되어 비용 및 기간이 증가하는 단점이 있어 재현성 확보가 어렵다. 따라서 시행착오를 줄이기 위해 사출성형 CAE(Computer Aided Engineering)을 적용하였다. 하지만 CAE를 통해 성형 조건을 예측하여 시행착오를 줄일 수는 있지만, 기존방법인 일반사출의 경우 금형의 온도와 용융된 수지의 온도차이

로 제품의 불량률이 증가한다. 더군다나 카본 충전제가 대량 함유 된 분리판의 경우 유동성이 좋지 않아 성형이 매우 어려운 편이다. 이에 따라, 성형성을 향상시킬 수 있는 사출성형기술이 필요하다.[7,8]

본 연구에서는 열가소성 고분자(PPS, PP)를 사용하였으며, 물리적 및 화학적 특성을 증대시키기 위해 주 첨가제로는 팽창 흑연, 합성 흑연과 보조 첨가제로는 유리 섬유, 카본 섬유, 카본 블랙을 사용하여 3가지의 복합소재를 제조 하였다. CAE를 통해 유동 패턴과 분산성을 예측하였고, 사출성형기술(E-MOLD)과 사출압축성형기능을 적용하여 제작된 PEMFC용 분리판의 전기전도도를 평가하였다.

## 2. 실험

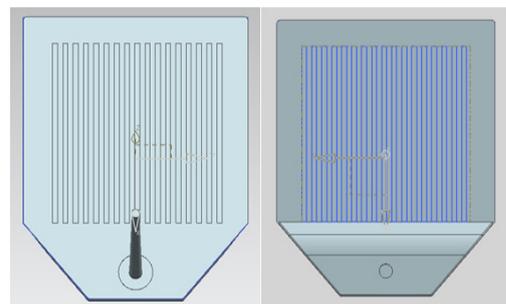
### 2.1 전도성 복합소재 제조

수지의 선정은 유동성이 좋고 충전제와 상호작용이 잘 이루어질 수 있는 PPS와 PP를 이용하였고, 충전제(팽창 흑연, 합성 흑연, 유리 섬유, 카본 섬유, 카본 블랙)는 전도성 향상에 효과가 좋고 가공성이 우수한 것을 선정하였다. 선정된 수지를 이용하여 3가지의 복합소재(PPS/EG/SG/CF, PPS/EG/SG/CF, PP/SG/CB)를 제조하였다.

### 2.2 모델링

제품개발 전 문제점을 예측하기 위하여 모델링을 하였다. Nx Uni-graphics를 이용하여 분리판 모델링을 하였고, 성형해석을 위해 Mold flow를 이용하여 해석에 필요한 모델을 완성하였다.

그림 1은 분리판의 제품 디자인과 분석 모델 디자인을 나타낸 것이다.



(a) 분리판 앞면

(b) 분리판 뒷면



(c) 분리판 3D Mesh

[그림 1] 분리판 모델링

CAE 해석을 위해 사용된 수지는 PP (Polymer Composite, PPG50)/Glass fiber 50%와 PPS(TOSOH, CM11900)/Glass fiber 50%이다. 해석조건은 표 1과 같다.

[표 1] CAE 해석 조건

수지	Injection time (sec)	Cooling time (sec)	Melt Temp. (°C)	Mold Temp. (°C)
PP	31	30	320	150
PPS	31	20	310	145

### 2.3 E-MOLD 금형

본 연구에서 사용된 E-MOLD 금형은 채널을 갖는 PEMFC용 분리판 제작을 위해 설계 및 제작 되었으며, E-MOLD 금형 개략도는 그림 2에 나타내었다.



[그림 2] E-MOLD 개략도.

E-MOLD는 금형의 고정측만 가열하는 단면가열방식으로 되어 있으며, 전열장치(마이크로 히터, 센서)를 이용한 금형가열 시 가열코어만을 가열하게 되는데 사출성형 시 E-MOLD 제어기에서 설정하는 가열온도만큼 열이 가열코어에 전달되어야 성형품의 성형성을 향상시킬 수 있다.

### 2.4 분리판 시제품 제작

분리판의 시제품 제작 시 성형성을 향상시키기 위해 사출성형기술(E-MOLD)과 사출압축기능을 적용하였다.

사출성형기는 MD100X-HPAP, MD650X-HPAP(NIGATA)를 사용하였고, 수지는 PPS(Moplen, EP640R)와 PP(Samsung total, HJ-700)를 사용하였고, 충전제는 팽창 흑연, 합성 흑연, 유리 섬유, 카본 섬유, 카본 블랙을 사용하였다. 함량은 표 2에 나타내었다.

[표 2] 수지 함량

Case 1		Case 2		Case 3	
Resin	Content (wt%)	Resin	Content (wt%)	Resin	Content (wt%)
PPS	37	PPS	37	PP	25
EG	50	EG	50	SG	60
SG	8	SG	8	CB	15
GF	5	CF	5		

### 2.5 분리판 성형성 및 표면 전기전도도 평가

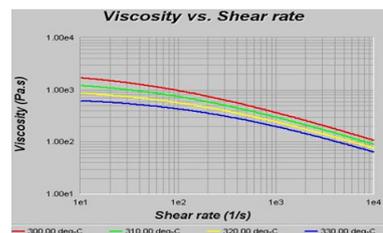
사출성형기술(E-MOLD)과 사출압축기능을 적용하여 성형된 분리판을 이용하여 성형성 및 전기전도도를 평가하였다. 성형성은 사출 조건에 따라서 확인하였으며, 전기전도도 평가는 Four point probe 장치(CMT SR-1000 version 3.1)를 사용하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 전도성 복합소재 선정

Cross exp model을 통해 선정된 수지는 PPS(Moplen, EP640R)와 PP(Samsung total, HJ700)이다.

그림 3은 PPS와 PP에 대한 Cross exp model을 나타낸 것이다.



(a) PPS



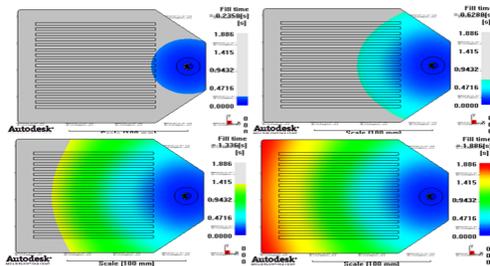
(b) PP

[그림 3] Cross exp model

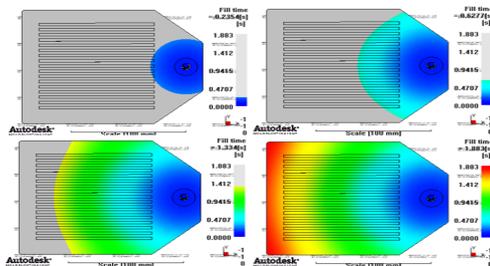
### 3.2 Mold flow 프로그램을 이용한 해석 결과

#### 3.2.1 유동 해석

금형온도에 따른 PPS/Glass fiber 50%와 PP/Glass fiber 50% 유동해석 결과를 그림 4에 나타내었다. 제품의 구조가 같을 경우 유동 패턴은 수지와 사출조건에 영향을 받지 않고 유사하게 나타났다.



(a) PPS



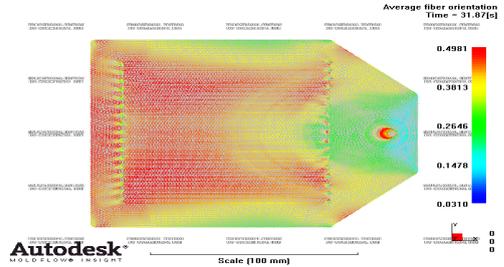
(b) PP

[그림 4] 유동 패턴

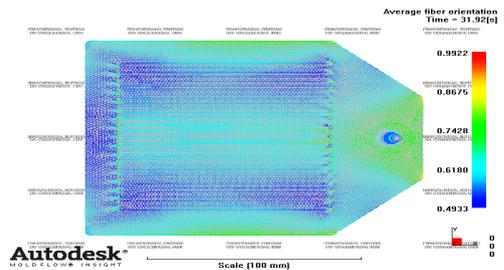
#### 3.2.2 섬유 배향 해석

충전제의 배향성이나 분산성은 분리판의 전기전도도 및 기계적 강도 등에 영향을 미칠 수 있는 요인으로 고분자 수지에 충전제가 얼마나 잘 분산이 되느냐에 따라 성능의 차이가 월등히 나타난다. 일반적으로 유기물과 무기물은 서로 상반되는 물질이기 때문에 혼합 자체가 어렵다. 두 물질의 혼합이 균일하게 이루어지지 않을 경우 제품의 성능을 현저히 저하시키는 원인이 되기 때문에 최

소화 할 수 있도록 변수를 제어하여 최적의 조건을 확립해야 한다. 그림 5는 분리판의 섬유 배향 해석결과를 나타낸 것이다.



(a) PPS

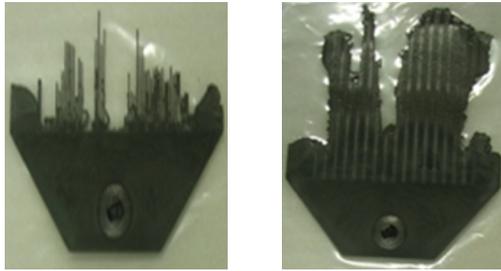


(b) PP

[그림 5] 섬유 배향

### 3.3 분리판 시제품

분리판의 제품 평가를 위해 무도장 및 무표면 결합 사출성형기술(E-MOLD)과 E-MOLD에서사출압축기능을 추가한 사출성형기술을 이용하여 제작하였고, 그림 8은 사출압축기능에 따른 성형성을 나타낸 것이다. E-MOLD의 경우 일반 사출과 다르게 전열장치를 이용한 금형가열 방식으로 수지와 금형 온도의 차이가 적으므로 충전 시 냉각으로 인한 수지의 점도 상승이 거의 없으므로 금형 내의 미세 캐비티 공간까지 충전할 수 있다. 하지만 현재 연구한 복합소재의 경우 무기물 함량이 높아 유동성이 매우 낮아 E-MOLD 기술로도 사출성형이 어렵다. 이를 보완하기 위해 E-MOLD 기술에 사출압축기능을 추가시킴으로써 유동성이 매우 낮은 복합소재를 높은 보압으로 밀어주는 원리로 금형을 충전할 수 있게 된다. 그림 8에서는 E-MOLD기술만 적용시켰을 경우에는 성형성이 떨어졌지만, 사출압축기능을 추가시켰을 경우 성형성이 향상되는 것을 볼 수 있다. 그림 9에서는 E-MOLD/사출압축기능을 이용하여 제작된 시제품을 나타내었다.



(a) E-MOLD (b) E-MOLD/사출압축  
[그림 8] 사출압축기능에 따른 성형성



(a) PPS/SG(8%)/EG(50%)/CF(5%)



(b) PPS/SG(8%)/EG(50%)/CF(5%)



(C) PP/SG(60%)/CB(15%)

[그림 9] 분리판 시제품

### 3.5 분리판 전기전도도 특성 평가

표 3은 PPS/SG/EG/CF, PPS/SG/EG/CF, PP/SG/CB로 제작된 성형품의 표면을 Four point probe 전기전도도 측정 장치를 이용하여 전기전도도를 측정한 표이다. 비교 결과, 충전제의 종류와 함량에 따라서 전기전도도의 특성이 차이가 날 수 있다.

[표 3] 복합소재에 따른 전기전도도

Material	전기전도도 (S/cm)
PPS/SG/EG/GF	10.60
PPS/SG/EG/CF	13.61
PP/SG/CB	51.7

## 4. 결론

본 연구에서는 고분자 전해질 연료전지용 분리판 제작을 통해 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 사출성형 해석(CAE)을 이용하여 유동성과 충전제의 배향성, 분산성을 예측함으로써 물리적, 화학적 특성을 예측할 수 있었다.
- 2) E-MOLD기술로 사출성형 한 결과 무기물 함량이 50% 이상 함유된 복합소재의 경우 유동성이 현저히 떨어져 성형이 어렵다는 문제점이 있다. 이를 보완하기 위해 사출압축성형기술을 추가시킴으로써 성형성이 향상됨을 확인 하였다.
- 3) E-MOLD/사출압축기능을 적용하여 고분자전해질형 연료전지 분리판을 제작하였고, Four point probe 전기전도도 측정 장치를 이용하여 표면 전기전도도 평가를 통하여 충전제에 따른 전기전도도가 향상됨을 확인하였고, 또한 성형성이 향상됨을 확인하였다.

## 참고문헌

- [1] 김남훈, “하이브리드 카본이 충전된 열가소성 복합재 분리판의 특성 연구” *전북대학교 대학원*, 2009.
- [2] Chen, S.C., Cheng, C.K., Shih, M.Y., Lin, Y.C., Peng, H.S., “Effects of Molding Parameters on the Through-Plane Resistance of Injection Molded Composite Polymer Bipolar Plate”, *Journal of polymer engineering*, Vol.29 no. 1/3, pp. 121-134, 2009.
- [3] Liao, S.H., Yen, C.Y., Weng, C.C., Lin, Y.F., Ma, C.C.M., Yang, C.H. Tsai, M.C., Yen, M.Y., Hsiao, M.C., Lee, S.J., Xie, X.F., Hsiao, Y.H., “Preparation and properties of carbon nanotube/polypropylene nanocomposite bipolar plates for polymer electrolyte membrane fuel cells” vol.185 no.2, pp. 1225-1232, 2008.
- [4] Rungsima Yeetsorn, Michael Fowler, Costas Tzoganakis, “INFLUENCE OF POLYPYRROLE ON ELECTRICAL

CONDUCTIVITY OF INJECTION-THERMOPLASTIC -COMPOSITE BIPOLAR PLATES", *ANTEC 2009*, pp. 2270-2275, 2009.

- [5] King, Julia A., Johnson, Beth A., Via, Michael D., Ciarkowski, Charles J., "Electrical conductivity of carbon-filled polypropylene-based resins", *Journal of applied polymer science*, Vol.112 no.1, pp. 425-433, 2009.
- [6] Dhakate, S.R., Mathur, R.B., Sharma, S., Borah, M., Dhami, T.L., "Influence of Expanded Graphite Particle Size on the Properties of Composite Bipolar plates for Fuel Cell Application", *Energy & fuels : an American Chemical Society journal*, Vol.23 no.1, pp. 934-941, 2009.
- [7] 정재엽, 김동학 "전사모사 프로그램을 이용한 E-MOLD의 Heating Line 배치의 최적화 설계에 관한 연구", *한국산학기술학회논문지*, Vol.9 no.6, pp. 1754-1759, 2008.
- [8] 김영균, 김동학, 손영곤 "무광식 패턴을 갖는 자동차 내장부품인 HD Switch Panel의 제조 및 전사성 평가", *한국산학기술학회논문지*, Vol.10 no.11, pp. 3280-3286, 2009.

---

**김 동 학(Dong-Hak Kim)**

[정회원]



- 1986년 2월 : 서울대학교 화학공학(공학사)
- 1988년 2월 : KAIST 화학공학과 (공학석사)
- 1993년 8월 : KAIST 화학공학과 (공학박사)
- 1998년 ~ 현재 : 순천향대학교 나노화학공학과 교수

<관심분야>

고분자가공, 유변학 및 이동현상

---

**윤 용 훈(Yong-Hun Yoon)**

[정회원]



- 2009년 2월 : 순천향대학교 나노화학공학과 (공학사)

<관심분야>

고분자가공, 사출성형

---

**임 승 현(Seung-Hyun Lim)**

[정회원]



- 2009년 2월 : 순천향대학교 나노화학공학과 (공학사)

<관심분야>

고분자가공, 사출성형