

탄소 보강 전도성 고분자 복합재료의 제조 및 특성 평가

허성일* · 윤진철* · 정창규* · 한경섭**

Fabrication and Characterization of graphite reinforced conductive polymer composites

S.I. Heo, J.C. Yun, C.K. Jung and K.S. Han

Key Words: Compression molding, electrical property, high filler loadings

Abstract

Graphite reinforced conductive polymer composites were fabricated by the compression molding technique. Graphite powder(conductive filler) was mixed with an epoxy resin to impart electrical property in composites. The ratio of graphite powder was varied to investigate electrical property of cured conductive composites. In this study, graphite filled conductive polymer composites with high filler loadings(>60wt.%) were manufactured to accomplish high electrical conductivity(>100S/cm). Graphite powder increase electrical conductivity of composites by direct physical contact between particles. While high filler loadings are needed to attain good electrical property, the composites becomes brittle. So the ratio of filler to epoxy was varied to optimize of cured composites. The optimum molding pressure according to filler was proposed experimentally.

1. 서론

최근 다기능 소재의 하나로써 연료전지 분리판에 대한 연구가 세계적으로 활발하게 이루어지고 있다. 연료전지는 종류에 따라 차이는 있으나 60%에 달하는 높은 효율을 가지며 무공해, 무소음 등의 장점으로 인해 미래의 친환경적 대체 에너지로서 많은 관심을 끌고 있다.

연료전지는 사용되는 전해질에 따라 다양한 종류가 있다[1]. 그러나 기술적 문제 및 상용화를 고려하여 최근의 연구는 고분자 전해질 연료전지(PEMFC), 고체산화물 연료전지(SOFC)가 주를 이

루고 있다[2]. 특히 고분자 전해질 연료전지는 자동차와 휴대용 전원에서의 적용을 목표로 활발한 연구가 진행중이다. 현재 연료전지의 상용화를 위해 제조 원가를 절감하려는 노력이 활발하게 진행되고 있다[3]. 본 연구에서는 연료전지 구성 요소 중 하나인 분리판의 제조 및 특성 평가를 실시하였다. 분리판의 주된 기능은 (i) 단위 전지 간에 전기가 흐르는 길의 역할, (ii) 연료와 공기, 물이 지나가는 통로의 역할, (iii) 스택 내에서 각각의 단위 전지를 분리하는 역할 등이 있다[4].

다양한 요구 조건을 만족시키기 위해, 여러 물질이 분리판의 소재로서 연구되어왔다[5]. 그 중 탄소 보강 전도성 고분자 복합재료는 제조비용이 낮고, 경량화가 가능하며 제조공정이 비교적 간단하여 제조시간을 줄일 수 있는 장점이 있다.

* 포항공과대학교 기계공학과 대학원

** 포항공과대학교 기계공학과

또한 고분자 수지의 사용으로 인해 비교적 높은 연성을 가질 수 있다[6].

고분자 수지에 전도성 입자를 첨가한 전도성 복합재료에 대한 연구는 이미 오래 전부터 수행되어오고 있다. 주로 사용되는 전도성 입자로는 흑연분말, 탄소섬유, 카본 나노튜브 그리고 카본 블랙 등이 있다[7-10]. 그러나 기존의 연구는 충전재의 비율이 낮은 상태에서 충전재의 비율이 증가함에 따라 전기 전도도가 급격히 증가하는 퍼콜레이션 현상에 대해 집중되어 있다. 본 연구에서는 압축성형법을 이용하여 흑연 분말의 충전 비율이 60wt.% 이상인 전도성 고분자 복합재료를 제조하였으며, 제조된 시편의 기계적·전기적 특성을 평가하였다.

2. 실험

2.1 제조 방법

본 연구에서는 고분자 수지로서 열경화성 수지인 에폭시를 선택하였다. 에폭시와 경화제는 국도화학주식회사의 YD-128와 D-230를 사용하였으며 경화시간 단축을 위해 KH-30을 사용하였다. 전도성 충전재로는 (주)카보닉스의 GX25(흑연분말, 직경 25 μ m)를 사용하였다.

먼저 에폭시와 경화제 그리고 경화촉진제를 70:23:7의 질량비로 섞은 뒤 흑연분말을 원하는 양을 넣어 교반해주었다. 낮은 충전비율에서는 일반적인 기계적 교반(stirring)으로도 충분하나 60wt.% 정도의 높은 충전비율에서는 high shear mixing 기법을 이용해야 한다. 이와 같이 제조된 흑연분말/에폭시 수지 혼합물은 hot press를 이용하여 120 $^{\circ}$ C에서 10분간 성형되었으며 성형 압력은 시편에 따라 100~2000psi로 변화시켰다.

2.2 실험 방법

제조된 탄소 보강 고분자 복합재료의 성형 상태를 조사하기 위해서 광학현미경을 이용한 미세구조 분석과 아르키메데스 원리를 이용한 밀도 측정이 이루어졌다. 전기 전도도 측정은 4 point probe technique을 이용해 측정하였다. 전도도 측정 시편은 60 \times 20 \times 2(mm)이며 probe 접촉 부분에는 은 paste를 바른 뒤 50 $^{\circ}$ C에서 2시간 동안 건조시켰다. 3점 굽힘 실험은 ASTM D-790을 이용하여 이루어졌으며 시편의 크기는 60 \times 25 \times 2(mm)

이다.

3. 결과 및 토의

3.1 제조 상태 분석

시편은 흑연분말의 양과 성형압력을 변화시키며 제조되었다. 성형 압력이 100psi로 고정될 경우, 흑연분말과 에폭시 수지의 질량비가 높아짐에 따라 흑연분말의 형상이 뚜렷해지며 질량비가 4:1이 되면 충전재인 흑연분말이 에폭시 수지로 코팅된 형상을 나타낸다. Fig. 1은 질량비가 4:1인 경우, 성형압력의 증가에 따른 소재의 미세구조를 나타낸다. 성형압력이 증가함에 따라 입자간의 치밀도가 높아지고 1000psi부터는 거의 치밀화가 이루어진 것을 알 수 있다. 이러한 경향은 소재의 밀도 변화에도 그대로 나타난다. 성형압력이 1000psi까지는 시편의 밀도가 증가하다가 이후로는 일정하게 유지되어 치밀화가 거의 이루어졌다는 것을 재확인할 수 있다.

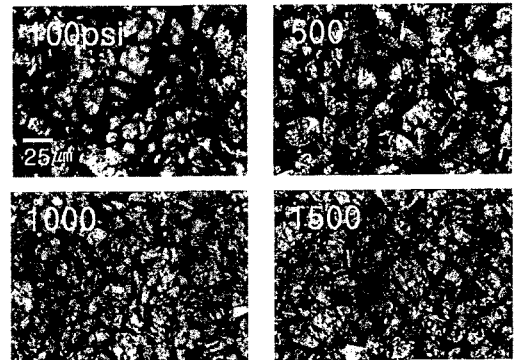


Fig. 1 Microstructure as molding pressure

3.2 전기 전도도

Fig. 2는 흑연분말의 질량비를 1.5:1에서 4:1까지 증가시켰을 때의 전기 전도도를 나타낸다. 이 그래프는 흑연 분말의 질량비가 증가함에 따라 전기 전도도가 증가하는 것을 보여주고 있다. 이는 미세 구조에서 이미 살펴보았듯이 흑연분말의 질량비가 증가함에 따라 흑연분말 입자간의 네트워크 형성이 활발해져 전도성 통로가 증가하기 때문이다. 그러나 보다 높은 전기 전도도를 얻기 위해서는 성형압력의 증가가 필요하다.

성형압력의 증가는 미세구조의 치밀도를 높여 주기 때문에 이는 전도성 통로의 증가를 가져다 줄 것을 예측할 수 있다. 이러한 경향은 Fig. 3

에서 확인할 수 있다. 성형압력이 증가함에 따라 전기 전도도가 증가하고 있으며 1000psi 이상에서는 그 양상이 완만해지는 것을 볼 수 있다. 이러한 결과는 제조 상태 분석의 결과와 일치하고 있다. 이를 통해 소재의 전기 전도도 증가는 입자 간의 치밀화로 인한 전도성 통로의 증가가 중요한 요인임을 알 수 있다. Fig. 4는 성형압력 1000psi일 때에는 흑연분말의 질량비를 6:1까지 증가시켜도 더 이상의 전기 전도도 향상을 기대하기 어려움을 보여준다. 이는 이미 질량비 4:1에서 흑연분말 입자간의 치밀화가 충분히 이루어지기 때문으로 해석된다.

3.3 굽힘 강도

성형압력에 따른 굽힘 강도는 제조 상태 분석

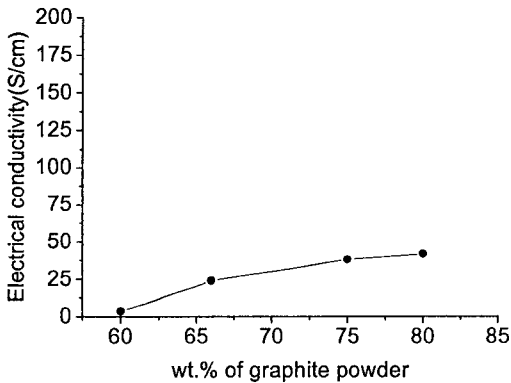


Fig. 2 Electrical conductivity as graphite powder wt.%(molding pressure: 100psi)

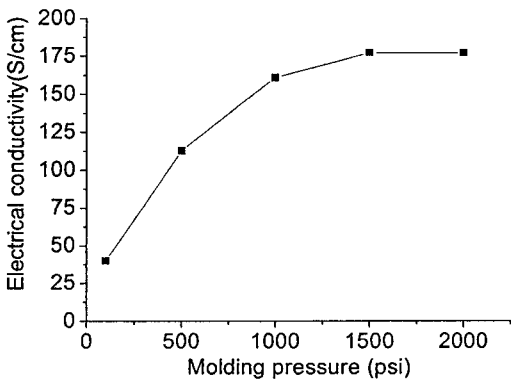


Fig. 3 Electrical conductivity as molding pressure(graphite:epoxy=4:1)

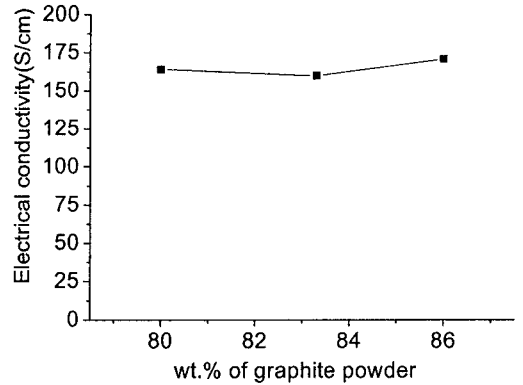


Fig. 4 Electrical conductivity as graphite powder wt.%(molding pressure: 1000psi)

결과와 비슷한 양상을 나타내었다. Fig. 6는 성형압력 1000psi에서 굽힘 강도가 60MPa 정도까지 증가하며 그 이상의 성형압력에서는 거의 일정하게 유지되는 것을 보여준다. 이는 소재의 치밀화가 이루어짐에 따라 에폭시 수지가 흑연분말 입자 사이에 보다 균일하게 분포되고 흑연분말과 에폭시 사이의 내부 기공이 줄어들기 때문이다.

Fig. 7은 성형압력 1000psi일 때에는 흑연분말의 질량비를 6:1까지 증가시키면 굽힘 강도가 감소하는 것을 보여준다. 이는 흑연분말의 양이 6:1까지 증가하면 에폭시 수지의 양이 적어져서 흑연분말에 고르게 흡착되지 못해서 발생하는 것으로 예상된다.

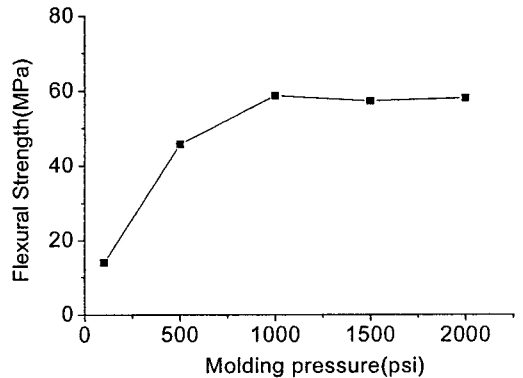


Fig. 5 Flexural strength as molding pressure (graphite:epoxy=4:1)

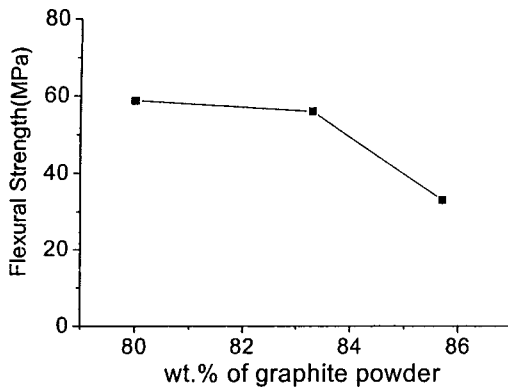


Fig. 6 Flexural strength as graphite powder wt.%(molding pressure: 1000psi)

4. 결 론

본 연구에서는 고비율의 탄소 보강 전도성 고분자 복합재료의 제조 공정을 개발하고 그에 따른 전기적, 기계적 특성을 평가하였다. 이를 통해 얻어지는 결론은 다음과 같다.

1. 압축 성형법을 이용하여 탄소 보강 전도성 복합재료를 제조하였으며 성형 조건의 최적화를 통해 180S/cm에 달하는 우수한 전기적 특성을 가지는 전도성 복합재료를 개발하였다.

2. 성형압력이 증가함에 따라 전기 전도도와 굽힘 강도가 증가하며 최적 성형압력은 흑연분말의 치밀화가 충분히 이루어지는 1000~1500psi이다.

후 기

이 논문은 현대자동차 주식회사의 지원에 의하여 연구되었으며 이에 감사드립니다.

참고문헌

(1) Dan Rastler, "Opportunities and challenges for fuel cells in the evolving energy enterprise," Vol. 3, 2000, pp. 7-11

(2) Sossina M. Haile, "Fuel cell materials and components," Acta Materialia, Vol. 51, 2003, pp. 5981-6000

(3) Isa Bar-On, Randy Kirchain and Richard Roth, "Technical cost analysis for PEM fuel cells," Journal of Power Sources, Vol. 109, 2002, pp. 71-75

(4) Viral Mehta and Joyce Smith Cooper, "Review and analysis of PEM fuel cell design and manufacturing," Journal of Power Sources, Vol. 114, 2003, pp. 32-53.

(5) Deanna N. Busick and Mahlon S. Wilson, "Low-cost composite material for PEFC bipolar plates," Fuel cells Bulletin, Vol. 2, No. 5, 1999, pp. 6-8.

(6) Mukesh K. Bisaria, Peter Andrin, Mohamed Abdou and Yuqi Cai, US patent 6,379,795, 2002

(7) Wenge Zheng and Shing-Chung Wong, "Electrical conductivity and dielectric properties of PMMA/expanded graphite composites," Composites Science and Technology, Vol. 63, 2003, pp. 225-235.

(8) J. Sandler, M. S. P. Shaffer, T. Prasse, W. Bauhofer, K. Schulte and A. H. Windle, "Development of a dispersion process for carbon nanotubes in an epoxy matrix and the resulting electrical properties," Polymer, Vol. 40, 1999, pp. 5967-5971.

(9) L. Flandin, T. Prasse, R. Schueler, K. Schulte, W. Bauhofer and J. -Y. Cavaille, "Anomalous percolation transition in carbon-black-epoxy composite materials," Physical Review B, Vol. 59, No. 22, 1999, pp. 349-355.

(10) Ryszard Wycisk, Ryszard Pozniak and Aleksy Pasternak, "Conductive polymer materials with low filler content," Journal of Electrostatics, Vol. 56, 2002, pp. 55-66