

10kW급 인산형 연료전지 제작 및 운전 특성

송락현, 김창수, 신동열, 최수현
한국에너지기술연구소 연료전지연구팀

Fabrication and Operational Characteristics of 10kW Class PAFC

Rak-Hyun Song, Chang-Soo Kim, Dong-Ryul Shin and Soo-Hyun Choi
Korea Institute of Energy Research

Abstract - In order to develop PAFC stack technology using 2,000cm² electrode-matrix, 10kW stack consisted of 63 single cell was fabricated and operated. The operation installation, and control and data acquisition system for the 10kW PAFC stack were designed and equipped. The stack showed the performance of 10kW (275A at 36.5V) and uniform distribution of temperature and voltage between the cells.

지당 1매씩 삽입하였으나, 앞서 설계된 전지수가 63개 이었기 때문에 이 설계 기준에 적합하도록 전지의 상부와 하부에는 3조와 4조의 단위전지당 1매씩의 냉각판을 삽입하였다.

또한 조립봉에 의한 가압으로 적층부의 높이가 변화되며, 적층부의 높이 변화로 발생하는 적층부의 메니폴드의 치수오차를 방지하기 위하여 적층부의 최상단과 최하단에 dummy 탄소판을 2조씩 삽입하였다. 이러한 dummy 탄소판의 삽입으로 메니폴더가 적층부에 정확하게 조립될 수 있다. 스택의 적층부가 완성된 후 앞서 설명한 반응 기체 메니폴드를 적층부의 양쪽에 부착시키며, 반응기체 메니폴드도 압축판과 마찬가지로 6개의 조립봉을 사용하여 적층부에 부착되도록 하였다. 부착된 메니폴드를 통한 반응 기체의 손실은 연료의 손실과 전지성능을 저하시키기 때문에 기체 밀봉을 완벽하게 되도록 설계하였다.

1. 서 론

인산형 연료전지를 개발하기 위해서는 핵심 요소 기술인 전극 제조 기술, 매트릭스 제조 기술, 단위전지 제조 기술이 매우 중요하다. 또한 이들을 대면적화하고 적층하여 실용화 규모의 대용량 연료전지 발전 시스템을 제작하기 위해서는 적층 기술, 밀봉기술, 스택 설계 및 제작 기술, 메니폴드 기술, 바이폴라판 및 냉각판 설계 기술, 인산 처리 기술등이 필요하다. 본 연구에서는 10 kW 스택을 제조하기에 앞서 개발된 요소 기술들을 실증하기 위해서 2000cm²의 대면적 10 cell 스택을 제작하고 특성 실험을 수행하였으며, 이 실험 결과와 지금까지 연구된 소형 스택 연구 결과를 활용하여 [1-2] 실용화 규모인 10 KW급 스택을 개발하였다. 이 스택에 사용된 구성 요소는 유효 전극 면적이 약 2000cm² 이었으며 전지 수는 63개 이었고 실용화를 고려하여 단일 스택으로 제작하고 모든 구성요소들이 스택 하우징속에 밀집되도록 설계하였다.

2.2 스택 조립

스택 조립과정은 바이폴라판, 양극, 매트릭스, 음극의 순서로 제작된 단위전지의 적층, 냉각판 삽입, 적층된 전지 양끝에 전류 수집판 삽입, 전기절연판 삽입 및 적층된 스택의 양 끝에 압축판 설치의 순서로 한다. 단위전지는 혼합법으로 제조된 공기극-매트릭스 판 위에 연료극을 설치하여 전극-매트릭스-전극 구조로 하고, 양면에 바이폴라판을 부착하여 만들어지게 된다. 스택은 이 전지를 필요한 만큼 적층하여야 한다. 적층시에는 부품들의 치수를 정확하게 맞추어야 된다

2. 실험 방법

2.1 스택 제조

2.1.1 스택의 구성 및 외형 설계

그림 1은 10kW 스택의 구성도를 나타내고 있으며, 주요 구성 요소는 연료전지 적층부, 냉각 공기 메니폴드, 연료전지 스택 받침대, 스택 하우징 등이다. 모든 구성요소들은 스택 하우징 속에 밀집되도록 설계하였다. 스택 전체를 의미하는 스택 하우징이 스택 받침대위에 설치되도록 하여 지상과 열적 전기적 접촉이 되지 않도록 하였다. 연료전지의 핵심인 적층부는 스택의 하우징에 위치하도록 하였으며, 적층부의 보호를 위해 스택 하우징 속에 적층부의 받침대를 설치하고 그 위에 연료전지 스택의 구성요소들을 적층하였다. 스택의 적층부 가운데는 바이폴라판과 냉각판으로 구성된 전지부분이 위치하고 전지부분의 상부와 하부에는 전류집전체, 절연판, 히터가 순서대로 놓인다. 그 다음 상부와 하부 압축판을 두고 조립봉을 사용하여 적층부를 적절한 힘으로 조인다. 압축판은 총 6개의 조립봉이 설치될 수 있도록 설계하였고 1개의 조립봉에는 2톤 이상의 힘에 충분히 견딜 수 있도록 설계하였다. 냉각판은 대부분 5조의 단위 전

수소 가스는 스택의 한쪽에서 들어가서 반응 후 반대편쪽으로 나오게 된다. 공기 또는 산소 가스는 바이폴라판의 한쪽(수소가 들어오지 않는 쪽)으로 들어가서 반응 후 반대편 쪽으로 나가게 된다. 본 10kW 스택에서 가스의 통로는 "Z" 형태로 설계하였으며 냉각 공기는 5개의 단위전지 마다 1개씩 직선 형태의 공기 통로를 갖는 판으로 공급되게 설계하였다. 전극 지지체 가장자리 밀봉은 미세 흑연분말과 isopropanol을 적정하게 반죽한 혼합물을 제조하여 합침 밀봉법으로 하였다. 그리고 단위전지 사이는 테프론 sheet를 사용하고 메니폴드의 밀봉은 Viton rubber를 사용하여 가스의 외부 유출을 방지하였다.

적층이 끝난 후 스택은 압축판을 지지하는 6개의 볼트를 각 재료의 강도를 고려하여 적절한 힘으로 조여서 전기적, 열적 저항이 최소가 되도록 해야 한다. 스택의 조임 압력과 스택내부의 전기저항의 관계를 보면, 스택을 조립하는 압력을 줄이면 초기에는 내부저항이 많이 감소하나 어느 정도 이상에서는 감소율이 적게 된다. 스택의 조임압력을 과도하게 하면 스택내부에 존재하는 구성요소들이 손상을 입게 되므로 내부저항이 더 이상 감소하지 않는 범위내에서 적절한 압력을 가하여 스택을 조립하여야 한다. 그러므로 스택의 적층 후 조임 압력은 내부저항이 압력에 크게 의존하지 않을 때까지 조였으며 본 스택 제조시에는 3~4kg/cm² 정도이다.

3. 결 과

3.1 대면적 substack의 성능 특성

2000cm²의 대면적 전극으로 구성된 10 cell 스택을 제작하여 성능 특성을 조사하였다. 10 cell의 경우 여러 가지 방법으로 제조된 전극 및 matrix의 성능을 검증하기 위해 제작되었으며, 전극과 matrix를 3종류 조합하여 제작된 단위전지를 10 cell 스택에 사용하였다. 10 cell내 삽입된 조합 1의 단위전지수는 4개 이었고, 조합 2와 조합 3은 각각 3개이었다. 이렇게 제작된 10 cell 스택의 성능 특성은 300 A, 6.32 V 이었다. 이 스택의 최고 출력은 2.7 kW이었다. 이 스택내 전극 및 matrix 조합별 각 단위전지의 성능은 조합 1의 성능이 가장 낮게 나타났다. 조합 2의 성능은 조합 3에 비해 약간 높게 나타났으나 전반적으로 조합 2와 3은 우수한 성능을 나타내었다. 따라서 10 kW 스택을 제조하기 위해서는 조합 2 또는 조합 3의 구성요소를 사용하는 것이 유리하다.

10 cell 스택의 연속운전 특성은 300 A, 상압에서 실시하였으며, 그림2에 나타낸 바와 같이 약 500시간의 연속 운전동안 10 cell 스택은 우수한 운전 특성을 나타내었다. 운전시 공급된 수소량은 2 Nm³/hr 이었으며, 300 A의 운전조건하에서 연료이용율을 계산해 보면 약 63% 이었다. 이 연료이용율은 상용화된 연료이용율의 약 80%에 비해 약간 낮은 값이다. 냉각 및 반응공기의 입출구 온도제어, 압력제어 등 운전조건을 개선시킴으로써 더욱 향상될 수 있다. 또한 이 스택을 약 400시간 연속 운전한 후 10 cell 스택내 최저 성능을 나타낸 조합 1의 단위전지 4개를 조합 2의 단위전지로 교체하였으며, 교체후 10 cell 스택의 성능은 300 A, 6.47 V로 개선되었다. 조합 1의 단위전지 그룹 4개를 교체한 후 스택내 전압 분포는 비교적 균일하였고 교체된 조합 1 부분의 단위전지 성능은 크게 개선되었다. 그러나 스택내 단위전지 교체후 교체되지 않은 단위전지 성능이 미소하게나마 감소되었다. 이것은 스택내 단위전지의 교체시 스택조립시 가한 압축용력의 이완으로 전지에 손상을 주었기 때문인 것으로 판단된다. 조합 1의 단위전지 그룹을 교체한 후 전체적으로 스택의 성능이 증가되었기 때문에 연속운전성능은 개선되었으며, 조합이 그룹의 단위전지가 교체된 10 cell 스택은 여전히 우수한 연속 운전 특성을 보여주고 있다. 그래서 10 cell 스택의 제조기술과 운전자료를 활용하여 10 kW 스택을 제작하였다.

3.2 10kW 스택의 운전 특성

10 kW 스택을 스택 내부 평균온도 180°C에서 측정 한 발전 특성 곡선을 그림3에 나타내었다. 스택을 100 시간 운전한 후 성능은 274A, 36.9V 이었으며, 이때 출력은 10.1 kW 이었다. 운전시간에 따른 발전 전압-전류 특성곡선을 비교해 보면 운전초기에 고전압에서 약간의 Tafel 거동 양상이 나타났지만 100시간 운전후 스택은 거의 직선적인 모양으로 천이하였다. 이것은 스택을 구성하고 있는 각 단위전지의 분극거동과 관계되며, 운전초기에 전극내 인산의 3상 계면형성과 반응기체의 흐름 양상이 각 단위전지에서 비슷한 거동을 나타내던 것이 운전시간이 경과함에 따라 Tafel 과전압, iR 과전압, 농도과전압의 기여분이 전류에 따라 각 단위전지에서 다른 양상으로 바뀌었기 때문인 것으로 판단된다. 달리 말하면, 스택의 전류-전압곡선은 각 단위전지의 분극곡선의 합으로 나타나며, 스택을 구성하고 있는 대면적 단위전지의 분극 곡선은 전극면적의 위치에 따라 다르게 나타나는 분극 곡선의 합으로 이루어진다. 그래서 스택의 특성 곡선을 이해하기 위해서는 각 대면적 단위전지의 분극거동을 이해해야 하고 그다음 이 단위전지로부터 적층된 스택의 분극곡선이 설명되어야 한다. 스택내 각 단위전지의 위치에 따라 기체 농도와 흐름이 다르기 때

문에 분극곡선은 달라지고 이것은 분극곡선의 기본이 되는 Tafel 영역, iR drop 영역, 농도과전압 영역을 쉽게 정의할 수 없게 만든다. 이로 인해 각 영역이 서로 겹쳐 나타나게 되어 100시간 운전후 스택의 발전 전류-전압특성은 직선적으로 변화하게 된 것으로 판단된다.

10 kW 스택의 발전 특성곡선을 보면 스택의 출력은 운전초기와 100시간 운전후 비슷한 출력값을 나타내었고 전류가 상승함에 따른 출력의 증가로 보아 이 10 kW급 스택은 최고 15 kW까지의 출력이 예상된다. 운전전 10 kW급 스택의 연료 이용율은 약 50%로 계산되었으며, 계속적인 연속운전을 통해 발전시스템이 안정화 되면 연료이용율은 크게 개선될 것으로 기대된다. 현재 이 스택은 계속적인 연속 운전중에 있으며, 향후에 이 스택의 Compact화, 연속운전 특성, 스택 해체 연구 등이 진행되어야 할 것으로 생각된다.

3.3 10kW 스택의 전압 및 온도특성

전류 150A에서 측정 한 운전초기 전지 그룹별 전압분포의 경우, 단위전지 전압이 최저 0.58 V에서, 최고 0.694 V로 100 mV 정도 차이가 발생하였으나, 1개 전지 그룹을 제외하고는 전반적으로 비교적 균일한 전압 분포를 나타내었다. 100시간 운전 후 200 A에서 측정 한 전압 분포를 보면 매우 균일한 전압분포를 나타내었으며, 전압분포의 최고치 0.7 V와 최저치 0.59 V 이었으나 100시간 운전 후 전체적인 전압분포는 운전초기에 비해 비교적 균일하게 되었다. 이것은 운전시간이 경과됨에 따라 스택 내부의 반응상태가 안정화 되기 때문인 것으로 생각된다. 스택내부의 반응상태에 영향을 미치는 요인으로는 전극의 3상 계면형성 반응과 기체흐름 등이 될 수 있으며, 3상 계면형성의 전극촉매층내 인산의 젖음성과 관계되고 기체흐름을 온도분포와 반응기체의 조성과 관계 될 것으로 판단된다.

운전초기에는 스택의 평균운전 온도는 180°C 이었으며, 100시간 운전 후 측정된 스택의 경우 평균 운전온도는 200°C 이었다. 180°C 운전시 스택내 온도차이는 약 20°C 범위이내 이었고 200°C로 운전시 스택내 온도 분포 차이는 약 30°C 이내이었다. 운전온도가 상승함에 스택내 온도 분포도 차이는 증가함을 알 수 있다. 현재 이 스택을 200°C로 운전한 것은 180°C로부터 운전온도의 상승에 따른 발전 특성을 비교해 보기 위한 것이었으나 온도상승에 따라 발전 특성이 크게 증가하지 않았기 때문에 정상 운전온도를 180°C로 운전하였다.

스택의 위치에 따른 스택내부의 온도 분포를 보면 상부와 하부에서 특별한 온도 분포거동을 나타내지 않았다. 본 연구에서 개발한 스택 구조의 경우, 반응기체의 출구가 스택의 하부에 위치하기 때문에 이 하부에서 기체조성이 감소하여 발열량이 증가되므로 하부의 온도가 상부에 비해 높게 나타날 것으로 예상하였으나 특별한 경향을 나타내지 않았다. 이것은 개발된 스택의 경우 연료 이용율이 50%로 비교적 낮기 때문에 기체가 하부까지 충분히 공급되었기 때문인 것으로 판단된다.

3. 결 론

인산형 연료전지 발전기술의 실용화를 위한 요소기술을 개발하기 위해 고성능 대면적 전극 및 매트릭스 제조 기술을 개발하고, 개발된 요소기술을 사용하여 대면적 10 cell 스택을 제작하여 실증시험을 수행하였다. 이 결과들을 활용하여 50 kW급 인산형 연료전지의 substack인, 10 kW급 인산형 연료전지 본체를 개발하였으며, 수행된 연구결과를 요약하면 다음과 같다.

10kW급 인산형연료전지의 스택을 개발하기 위해 개발된 전극 및 매트릭스와 대면적 10cell 스택 제조기술을 근거로 하여 2000cm², 63cell로 이루어진 10kW급 스택을 제작하고 성능특성 시험을 실시하였다. 이 스택

은 50kW급 이상의 실용화 규모의 대용량 스택제작에 직접 사용 가능한 substack이다. 이 스택은 연료전지 적층부, 냉각공기 메니폴드, 반응공기 메니폴드, 연료전지 스택 받침대, 스택 하우징 등으로 구성되며, 모든 구성요소들이 스택 하우징속에 밀집되도록 설계하고 제작하였다. 스택의 반응기체 흐름은 Z모양이 되도록 설계하고 단위전지 5조당 1매의 냉각판을 삽입하여 운전시 스택내부가 균일한 온도분포를 갖도록 하였다. 또한 스택 제작을 위해 각각 63매의 대면적 공기극과 연료극을 제조하였으며, 매트릭스는 공기극위에 코팅하였다.

스택의 전극 배열은 기체밀봉을 효과적으로 하기 위해 연료극을 상부에 위치하도록 하고 매트릭스가 코팅된 공기극은 하부에 위치하도록 하였다. 10kW급 스택을 운전한 결과, 스택은 275A, 36.5V 의 정격, 전류, 및 정격 전압하에서 10kW의 성능을 나타내었다. 설계치와 실험치는 실험오차 범위내에서 거의 일치하였다. 10kW의 스택내 온도 분포는 상부와 하부의 온도편차가 약 20℃ 이내로 매우 균일한 온도 분포를 나타내었으며, 전지간 전압분포도 매우 균일하였다.

감사의 글

본연구는 97년도 선도기술사업인 인산형 연료전지용 단위전지 요소기술 개발과제의 일환으로 수행되었습니다.

(참 고 문 헌)

- [1] 최수현 외, "연료전지 기술개발 (II)", 에너지기술연구소 연구보고서, KE-910335, 과학기술처, 1992.
- [2] 신동열 외, "인산형 연료전지용 단위전지 요소기술 개발에 관한 최종 보고서", 1993-N-FC01-S-01, 통산산업부, 1998.

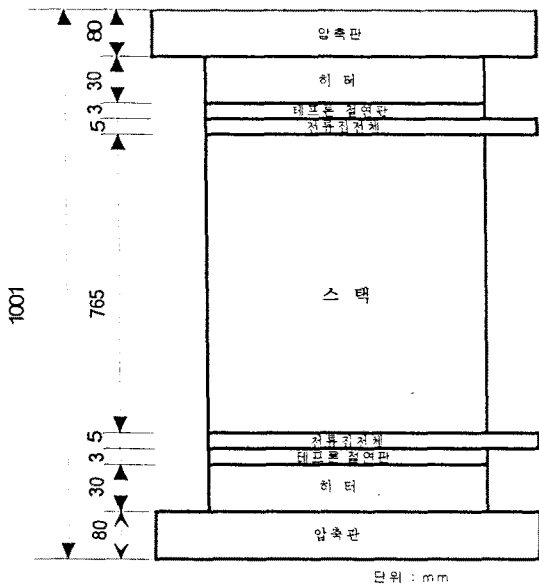


그림1 10 kW 스택의 구성도.

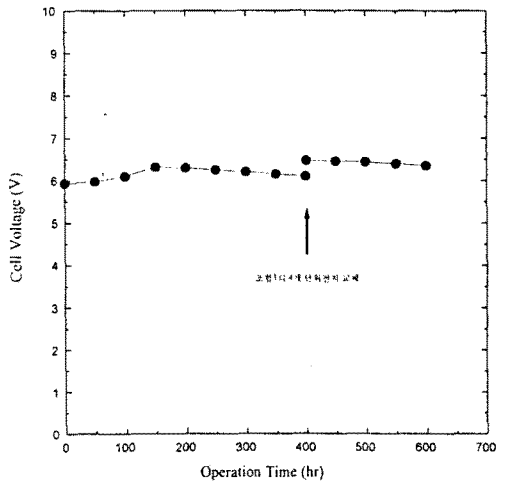


그림 2 10 cell 스택의 운전 특성

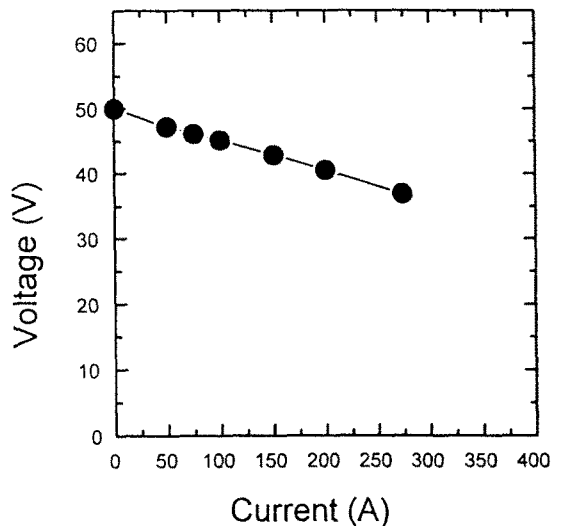


그림3 100시간 운전후 10 kW 스택의 성능 특성