

5kW급 고분자 연료전지 시스템의 개발과 운전

°전영갑, 백동현, 전광선, 김창수, 신동렬
한국에너지기술연구소

Development and Operation of 5kW-Class Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell System

Y.-G. Chun, D.-H. Peck, K.-S. Jeon, C.-S. Kim and D.-R. Shin
Korea Institute of Energy Research

Abstract - Developed was a 5kW-class polymer electrolyte membrane fuel cell(PEMFC) system comprised of fuel cell stack, fuel processing, thermal and water management subsystems and ancillary equipments. Several large single cells have been fabricated with different gas flow field patterns and paths, and the gas flow field pattern for the stack has been determined based on the single cell performance of thin film membrane electrode assembly (MEA). The PEMFC stack was consisted of 100 cells with an electrode area of 300cm², having serpentine flow pattern. Fuel processing was developed including an autothermal methanol reformer and two preferential CO oxidation reactors. The fuel processing was combined to PEMFC operation system consisted of air compressor and thermal and water management subsystems. The PEMFC stack showed performance of 5kW under the supply of H₂ and air, but its performance was lowered to 3.5kW under the supply of reformed gas.

1. 서 론

고분자 연료전지 (polymer electrolyte membrane fuel cell (PEMFC)) 시스템은 연료전지 스택, 연료공급부, 공기공급부, 열 및 물처리부, 전력변환부 등으로 구성된다. 이 가운데 중요한 구성요소는 연료전지 스택과 연료공급부 그리고 열과 물처리부이다. 이들 구성요소는 고분자 연료전지의 고유한 특성 때문에 특별히 연구되어야 한다. 다른 구성요소는 다른 형태의 연료전지 시스템에서도 연구되어 적용되고 있다. 고분자 연료전지의 전해질로 사용되는 고분자 전해질막은 고체이며 수분을 충분히 함유해야만 이온전도성을 보이는 특성을 지니므로 고체인 고분자 전해질과 촉매의 접촉 면적을 충분히 확보하는 전극제조 방법과 전해질막에 수분을 공급하는 방안이 고려되어야 한다.

고분자 연료전지 스택의 성능은 전극과 전해질막 접합체의 성능과 스택의 구조와 유로형상에도 크게 의존한다. 스택의 구조와 유로는 반응가스를 각 전극에 고르게 공급할 수 있고, 고분자 전해질막에 물을 공급할 수 있고, 공기극에서 발생하는 반응 생성물인 물을 효율적으로 제거할 수 있어야 한다. 고분자 연료전지는 작동온도가 낮아서 발생하는 열을 물로 냉각시킬 수 있으나 전력밀도가 높기 때문에 각 전극으로부터 발생하는 열이 많아서 스택 제작시 냉각효율도 고려하여야 한다.

연료공급부는 고분자 연료전지의 연료로 공급되는 수소를 생성하여 공급하는 역할을 한다. 고분자 전해질막의 작동온도가 낮기 때문에 고분자 연료전지에 연료로 공급되는 개질가스 중의 CO가 전극촉매를 피독시킨다. 따라서 고분자 연료전지의 연료공급부의 연료개질기는 개질

가스중의 CO 농도를 수십 ppm 이하로 낮출 수 있는 정제장치를 필요로 한다. 고분자 연료전지의 상용화를 앞당기기 위해서는 연료전지 스택기술 뿐만 아니라 스택을 운전하는데 필요한 각 구성요소를 조합하여 시스템화하는 기술을 확보하는 것이 필요하다.

본 연구에서는 5kW급 고분자 연료전지 시스템을 제작하기 위해 개발한 스택관련 요소기술과 연료 개질기를 포함하는 운전시스템의 제작 및 운전에 관한 내용을 기술하고자 한다.

2. 본 론

2.1 5kW급 시스템의 제작

고분자 연료전지 시스템을 구성하는 스택과 운전설비 및 연료개질기의 요소 기술을 개발하고 이를 바탕으로 5kW급 스택과 연료개질기가 포함된 운전설비를 제작하였다.

2.1.1 5kW급 스택의 제작

고분자 연료전지의 스택은 전해질막, 전극, 기체확산층 및 바이폴라 판소판으로 구성된다. 고체인 전해질과 전극촉매의 접촉 면적을 넓히기 위해 전극촉매 슬러리에 전해질 분말을 섞고 이 전극촉매 슬러리를 전해질막에 접합시키는 방법을 개발하였다. 전극/전해질막 접합체 (MEA) 제작에 사용한 전해질막은 3% H₂O₂ 수용액속에서 유기 불순물을 제거한 다음, 20% NaOH 수용액으로 처리하여 Na⁺ 형태로 바꾸었다. 전극용 슬러리는 5wt% NAFION 용액, 40wt% Pt/C (공기극), 30wt% Pt-Ru/C (연료극) 촉매와 글리세롤을 사용하여 제조하였다. 이 슬러리를 이형판에 코팅한 다음 건조시켜서 전해질의 양면에 열간 압축하여 코팅층이 전해질막에 전사되도록 하였다. 전극의 백금함량은 0.2 mg Pt/cm²로 조절하였다. 이렇게 제조한 MEA는 0.5M H₂SO₄ 용액으로 처리하여 사용하였다. 가스 확산층은 방수처리한 탄소천에 탄소분말과 PTFE 현수액을 섞은 슬러리를 코팅하여 사용하였다.

스택의 구조와 유로형상을 결정하기 위해 그대로 확장하여 스택에 적용할 수 있는 구조의 대면적 단위전지형 수차에 걸쳐 제작하였으며, 발생하는 스택구조와 유로형상의 문제점을 보완하였다. 처음에 제작한 대면적 단위전지는 유입구와 세로방향의 직선형 유로를 연결하는 가로방향의 긴 회랑을 갖고 있었다. 반응가스가 각 직선유로에 고르게 공급되기 위해서는 회랑의 내용적이 커야하므로 바이폴라판의 두께가 두꺼워지게 된다. 이 대면적 단위전지는 공기극쪽의 직선형 유로내에 물방울이 맺힌 것을 실험 후에 관찰할 수 있었다. 이 같은 물방울은 반응가스의 원활한 흐름을 방해할 수 있으므로 유로를 따른 압력손실이 큰 유로형상으로 바꾸어 물방울 맺힘을 방지하여야 한다.

바이폴라 탄소판의 두께를 줄이고 유로의 길이에 따른 압력손실을 크게 하기 위해 회랑을 없애고 유입구와 출구 사이를 유로로 직접 연결하였으며, 유로의 수를 줄여

서 유로가 바이폴라판의 전체면적을 S자 형태로 채우도록 하여 유로의 길이를 길게 하였다. 반응가스 및 물의 유입구를 바이폴라 탄소판의 모서리부분에 위치시키고 S

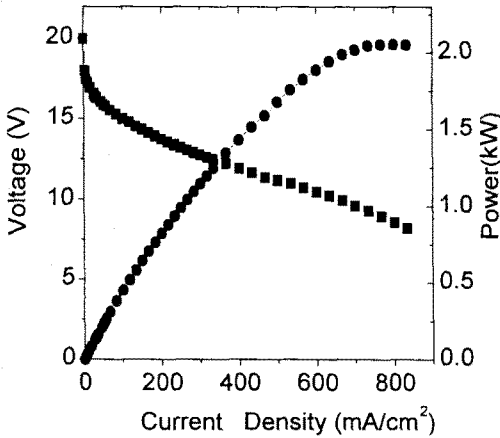


그림 1. 전극면적 300cm² 인 20 개의 전지로 구성된 2kW급 고분자 연료전지 스택의 성능 곡선 (수소/산소운전)

자형 가스유로는 면적을 최대한 크게 하여 바이폴라판의 가운데에 가공하였다. 유입구의 크기는 개질가스 및 공기 운전할 때 필요한 유량을 고려하여 각각 결정하였다. S자형 유로의 단면적과 수는 압력손실의 컴퓨터 모사와 실제 단위전지 성능 실험을 통하여 결정하였다.

스택은 내부가습부와 반응부로 구성되며 필요에 따라 내부가습부 없이도 사용이 가능하도록 제작하였다. 반응기체는 먼저 가습부에서 가습한 후 반응부에 공급되도록 하였으며, 공기는 위에서 공급되고 개질가스는 밑에서 공급되도록 스택구조를 제작하였다. 이렇게 함으로서 공기

극에서 발생하는 반응 생성물인 물의 제거를 용이하게 하였다. 이와 같은 구조로 5kW급 스택을 제작하기 전에 스택의 구조와 유로형상에 대한 검증용을 위해 20개의 전지로 구성된 내부가습형의 스택을 제작하여 성능을 평가하였다. 그림 1은 이 스택을 수소와 산소로 운전한 결과를 보여주고 있으며 2kW의 성능을 보였다. 그러나 이 스택의 경우 장시간 운전시 스택온도가 증가하는 경향을 보였다. 따라서 5kW급 스택의 제작시에는 이를 고려하여 냉각판의 유로를 보다 간단한 새로운 형태로 제작하였다. 5kW급 스택은 가스유로의 면적이 300 cm² 인 바이폴라 탄소판과 총 100 개의 MEA로 구성되었으며 외부가습형이며 각 전지 바로 이웃에 냉각판이 설치되어 있다.

2.1.2 메탄올 개질기

메탄올 연료개질부와 냉각순환부를 포함한 운전시스템의 대략적인 계통도를 그림 2에 나타내었다. 메탄올 개질기는 메탄올을 촉매를 이용하여 물이나 산소와 반응시켜 수소와 이산화탄소를 얻는 장치이다. 본 연구에서 개발한 메탄올 개질기는 일반적인 수증기와 메탄올의 개질 반응에 필요한 열을 메탄올과 산소의 산화반응에 의해 발생하는 열로 직접 공급하는 자열 개질기이다. 따라서 메탄올과 물을 물비율 1:1로 섞은 메탄올 용액과 공기를 반응기의 촉매상에서 반응시켰다. 메탄올 개질기는 메탄올 용액을 증발시키는 증발기와 개질반응이 일어나는 반응기 그리고 CO 제거기로 구성된다. 증발기는 순수한 메탄올을 백금 촉매상에서 공기중의 산소와 반응시킬 때 발생하는 반응열을 이용하여 연료로 공급되는 메탄올 용액을 가열하여 증발시키는 역할을 한다. 기화된 연료는 반응기에 공급되어 구리산화물과 아연산화물로 된 촉매상에서 공기중의 산소와 반응하여 수소가 50% 이상 포함된 개질가스를 생성한다. 정상운전 상태일 때 증발기의 온도는 약 150 °C로 유지하고 반응기의 온도는 470 °C를 유지하였다. 이때 반응기에 공급되는 메탄올 용액의 공급 속도는 88g/min 이고 공기의 공급속도는 27 L/min이었으며 개질가스중의 수소는 약 5600 L/min

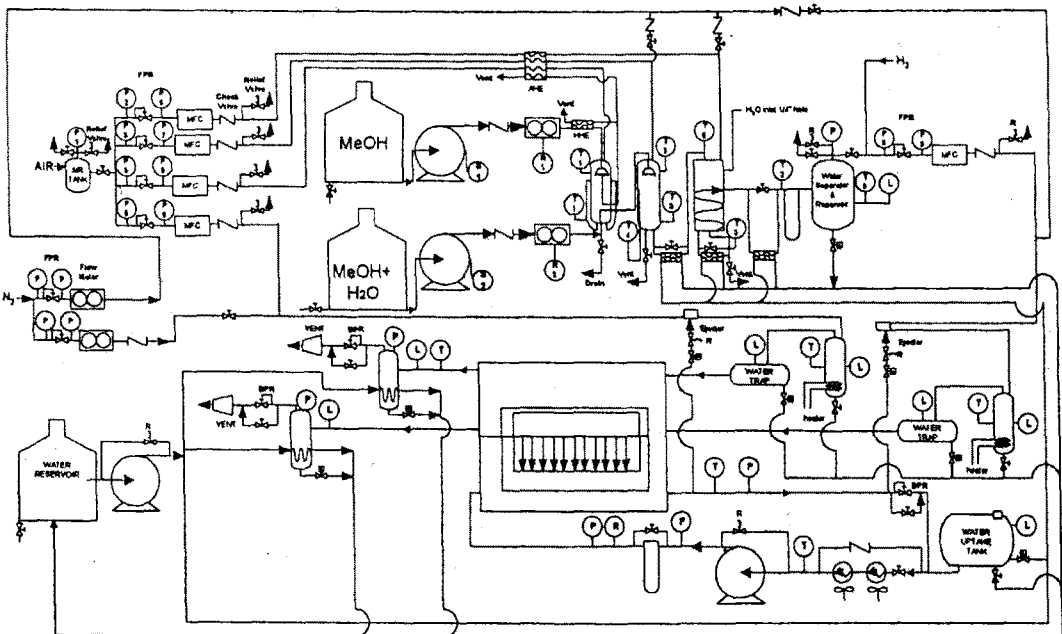


그림 2. 고분자 연료전지 시스템의 계통도

이 생성되었다.

개질가스중에 존재하는 CO를 제거하기 위해 Pt-Ru 촉매를 사용하여 선택산화 반응기(PROX)를 제작하였으며, 이를 개질반응기의 출구에 연결하였다. PROX의 온도는 200 °C를 유지하도록 개질가스의 공급온도와 공급공기의 유량을 조절하였다. PROX 반응기를 통과한 개질가스의 품질은 소형 단위전지의 성능 시험을 통해 평가하였다. PROX에 공급되는 공기의 총 유량은 약 12 L/min 이었다.

2.1.3 스택 운전 설비

공기 공급부는 연료개질기와 연료전지 스택에 공기를 공급하는 역할을 하며 공기압축기와 정제기로 구성되어 있다. 열과 물처리부는 연료전지 스택과 연료개질기에서 발생하는 반응열을 제거하고 반응가스에 수분을 공급하는 역할을 한다. 냉각수는 가습부에 공급되는 물로도 사용되기 때문에 증류수를 사용하였으며 이온교환수지와 같은 정제기를 거쳐 순환시켰다. 운전제어부는 연료공급부에 공급되는 연료 및 공기의 유량, 연료전지 스택에 공급되는 유량 및 가습부와 냉각부의 각종 밸브를 제어한다. 전자부하 및 데이터 획득부는 컴퓨터가 장착된 전자부하로 연료전지 스택에서 발생하는 전력을 정전류 및 동전류 모드로 소모하면서 전류와 전압을 기록한다. 전력변환기 인 인버터는 연료전지에서 발생하는 직류전력을 교류전력으로 변환시키는 역할을 하며 여러 가지 교류부하를 적용할 수 있게 해준다.

2.2 시스템의 운전

그림 3은 그림2의 계통도에 따라 제작한 시스템과 고분자 연료 전지스택을 연계하여 운전하는 모습을 보여주고 있다. 그림 4는 5kW급 스택을 수소와 공기로 운전했을 때의 성능 곡선을 보여준다. 이 경우 5kW이상 최대 7kW까지의 성능을 얻을 수 있었다. 그러나 동일한 스택을 시스템에 연계하여 개질가스과 공기를 사용하여 운전하였을 때는 성능이 3.5kW로 떨어지는 것을 그림 5에서 보여준다. 이와 같은 성능의 저하는 개질가스 중에 잔존하는 CO의 농도가 전극의 촉매를 피독시킬 만큼 충분하다는 것을 의미한다. 개질기 운전조건인 순간적인 변화로 인해 과량 유입되는 CO가 스택의 성능을 크게 떨어뜨릴 수 있다. 따라서 개질기의 최적 운전조건의 확립과 아울러 안정적인 운전에 대한 연구가 필요하다. 앞으로 이에 대한 연구를 지속적으로 수행할 예정이다.

3. 결 론

본 연구에서는 고분자 연료전지 시스템의 구성요소를 각각 개발하고 이를 상호 연계하여 일체형 시스템을 제작 운전하였다. 전극면적 300 cm² 인 100개의 전지로 구성된 고분자 연료전지 스택을 제작하여 수소와 공기로 운전하여 7kW의 성능을 얻었다. 부분산화법에 의한 메탄을 연료개질기를 개발하여 스택 운전설비에 장착하였으며, 개질가스과 공기로 스택을 연계운전 한 결과 3.5kW의 성능을 얻었다. 이 같은 성능의 감소는 개질기 운전조건의 순간적인 변화로 인한 개질가스 중의 CO 농도 증가에 관련되어 있는 것 같다. 현재 보다 안정적이고 최적화된 개질기 운전 조건에 대한 연구를 진행하고 있다.

(참 고 문 헌)

- [1] Y.-G. Chun, C.-S. Kim, D.-H. Peck, and D.-R. Shin, "Performance of a polymer electrolyte membrane fuel cell with thin film catalyst electrodes", J. Power Sources, vol. 71, pp.174-178, 1998.
- [2] Y.-G. Chun, C.-S. Kim, D.-H. Peck, D.-H. Chung and D.-R. Shin, "Performance Evaluations of

Membrane Electrode Assemblies Made by Transfer Printing Technique," 1998 Fuel Cell Seminar, Nov. 16-19, 1998, Palm Springs, California, USA, 1998.
 [3] 김창수 외, 5kW급 고체고분자 연료전지 시스템 개발, 한국 에너지기술연구소, 연구보고서, 1996N-FC01-P-01, 통상산업부 (1999).

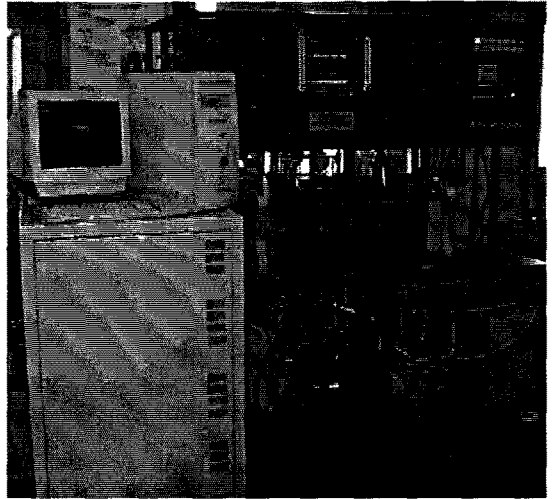


그림 3. 5kW급 고분자 연료전지 시스템

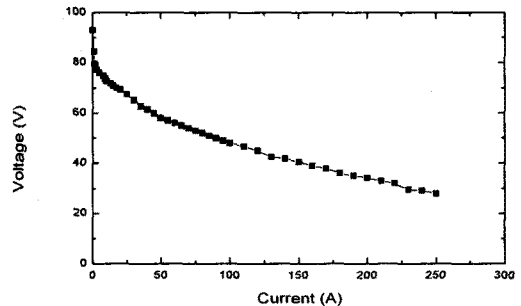


그림 4. 전극면적 300cm² 인 100개의 전지로 구성된 5kW급 고분자 연료전지 스택의 성능곡선 (수소/공기 운전)

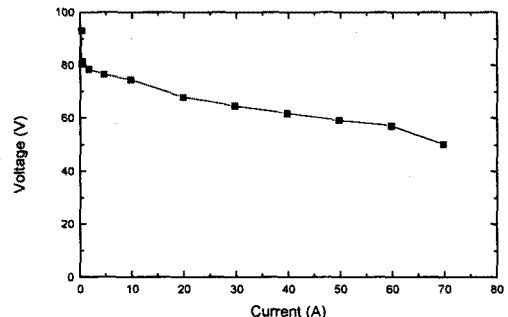


그림 5. 전극면적 300cm² 인 100개의 전지로 구성된 5kW급 고분자 연료전지 시스템의 성능곡선(개질가스/공기 운전)