

30W급 직접 메탄올 연료전지 스택 개발 Development of 30W Class Direct Methanol Fuel Cell Stack

백동현, 정두환, 이봉도, 이병록, 신동열, 김혁년*, 박명석**

한국에너지기술연구원, *LG 화학 기술연구원, **LG 전자 DA 연구소

1. 서론

직접 메탄올 연료전지(Direct Methanol Fuel Cell, DMFC)는 메탄올 연료와 공기를 사용하여 직접 발전하는 청정 발전 시스템이다. DMFC는 연료를 수소나 탄화 가스 아닌 액체인 메탄올을 사용하고 작동 온도도 100℃ 이하이므로 수송과 취급이 용이하다. 또한 연료개질기(관련된 부피와 효율손실)가 필요없고 발전 시스템을 소형으로 간단하게 제작할 수 있기 때문에 가정용 비상전원, 레저 또는 스포츠 용품(예, 골프 카트)의 이동용 전원, 무인등대등 원격지 발전, 태양열대체 교통신호기, Computer backup 메모리 전원, 소형 수송용 전원(Motor bicycle), 전자기기용 휴대용 전원으로 응용이 가능하다.

이러한 DMFC 발전 시스템을 개발하기 위해서는 핵심 기술에 해당하는 고성능 스택의 개발이 필수적이다. 스택의 개발에는 bipolar plate의 설계, 스택의 적층 및 실링 기술, 집전 기술, MEA 설치 기술, 연료 및 공기의 공급 및 배출 기술, CO₂ 제거 기술 등이 필수적으로 진행되어야 한다. 또한 이와 더불어 고성능 MEA 제작 기술도 동시에 이루어져야 한다.

현재 국내에서는 DMFC 발전 시스템을 개발하기 위하여 에너지자원기술개발사업의 일환으로 100W급 DMFC 발전 시스템에 대한 연구 개발이 진행되고 있다. 이 프로그램 중 100W급 DMFC 스택의 연구 개발 분야에서는 지난 1차 연도에 스택용 단위전지, 스택용 MEA 제조 공정, 스택 설계/제조 및 운전 특성 분석, 30W 급 스택 모듈 개발 등의 기술 개발이 이루어졌다. 본 연구에서는 1차년도에 추진된 30W급 DMFC 스택 개발의 연구 결과를 요약하여 소개하고자 한다.

2. 실험방법

3.2.1 스택 설계

Bipolar plate는 연료극 및 공기극의 연료를 통과 시켜 주는 것과 동시에 단위전지 사이의 가스의 혼합을 방지하고 전기적인 회로를 연결하는 역할을 담당하도록 하기 위하여 구입한 흑연 플레이트를 자체 개발한 설계 기술에 따라서 제작하여 사용하였다.

두께가 약 2.5cm 이고 크기가 13.0x8.0cm인 흑연판을 이용하여 흑연판의 한쪽면을 통과하여 반응 연료가 주입 되게 하고 높이 1mm, 폭 1mm의 크기로 연료 채널을 제작하여 반응 연료가 통과하게 하였다. 연료의 입구와 출구는 고압에서도 연료가 누출되지 않게 테프론으

로 특수하게 제작된 나사를 연결하여 연료의 주입 및 배출 라인과 연결되게 하였다.

본 연구에서 설계 제작한 다양한 형태의 직접메탄을 연료전지 스택의 사양과 특성을 표 1에 나타내었다.

그림 1은 외부 매니폴드형 30W급 직접메탄을 연료전지 스택 1의 외형 사진을 나타낸 것이다. 이 스택은 전극면적이 $75\text{cm}^2(6.6 \times 11.4\text{cm})$ 이고 바이폴라 플레이트의 크기는 $130 \times 80\text{cm}$ 이다. 외부 매니폴드형 스택 1은 외부 매니폴드로 연료가 공급되어 스택으로 들어가는 구조로 설계 제작하였다. 외부 매니폴드는 스택의 바이폴라 플레이트를 적층한 크기에 맞도록 그 크기를 조정하였으며, 형태는 사각형을 이루고 있다. 물과 메탄올의 혼합 연료(2M 농도)는 펌프를 통하여 외부 매니폴드에 모여서 다시 스택 내부로 공급된다. 그리고 스택의 1번 셀부터 10번 셀이 함께 연료가 공급되어 출구쪽의 외부 매니폴드에 연료가 모아져 스택외부로 배출되어지며 사용된 연료는 냉각시스템을 통과하여 식혀진 후 다시 메탄올 연료저장기로 공급되어지는 방식이다. 공기극의 경우에도 같은 방식으로 진행되는데 먼저 공기 또는 산소 저장용기에서 기체조절기를 통해 배출된 기체가 외부 매니폴드를 통과하여 스택 내부로 공급되어지며 외부 매니폴드에 채워진 기체는 1번 셀에서부터 10번 셀까지 함께 기체가 공급되어지며 반대편 출구쪽에서 기체가 외부 매니폴드에 모아진 후에 스택외부로 배출되어지는 구조로 되어있다.

그림 2는 외부 매니폴드형 30W급 스택 2를 나타낸 것이다. 이 스택은 전극면적이 $73\text{cm}^2(6.3 \times 11.6\text{cm})$ 이고 바이폴라 플레이트의 크기는 $130 \times 80\text{cm}$ 이다. 이 스택은 스택 1의 운전 결과를 토대로 설계를 일부 개량하여 제작한 것이다. 외부 매니폴드형 스택 2는 전극면적을 이루는 부분의 채널 골과 산의 폭을 스택 1의 경우보다 넓게 설계한 것이다. 이렇게 하여서 연료극의 연료와 공기극의 공기 및 생성수의 공급과 배출이 스택 1의 경우보다 용이하도록 하였다. 이 스택에서도 연료와 공기 및 산소가 외부 매니폴드로 공급되어 스택으로 들어가는 구조로 설계 제작하였다. 이 스택의 전극은 모두 11 셀로 구성하였으며 셀 간에 설치되는 가스켓과 스택의 체결부를 개량하여 전체 두께가 10셀의 스택 1과 동일하게 되도록 하였다. 그리고 매니폴드 부분은 연료전지 스택 2의 운전 중에 연료 및 산화제의 공급을 비롯하여 생성수 및 CO_2 발생을 외부에서 관찰하기 위하여 투명 플라스틱으로 제작하였다.

내부 매니폴드로 이루어진 스택은 전극면적이 $66\text{cm}^2(5.8 \times 11.4\text{cm})$ 이고 바이폴라 플레이트의 크기는 $130 \times 80\text{cm}$ 이다. 물과 메탄올로 혼합된 연료는 펌프를 통하여 직접 스택 내부로 공급되며 스택내부의 내부 매니폴드에 연료가 채워지며 1번 셀부터 5번 셀이 함께 연료가 공급되어 출구쪽의 매니폴드에 연료가 모아져 스택외부로 배출되어지며 사용된 연료는 냉각 시스템을 통과하여 식혀진 후 다시 메탄올 연료저장기로 공급되어지는 방식이다. 공기극의 경우에도 같은 방식으로 진행되는데, 먼저 산소저장용기에서 기체조절기를 통해 배출된 기체가 스택내부로 공급되어지며 내부 매니폴드에 채워진 기체는 1번 셀에서부터 5번 셀까지 함께 기체가 공급되어지며 반대편 출구쪽에서 기체가 내부 매니폴드에 모아진 후에 스택외부로 배출되어지는 구조로 되어있다.

3.2.2 MEA 제조

연료극 및 공기극 지지체인 탄소종이는 테프론 에멀전(Dupont Co., Teflon 120J)에 적신

후에 실온에서 건조시킨 후, 질소 분위기의 건조기에 350 °C의 온도에서 30분간 소결시켜, 강도 및 발수성을 부여하였다.

연료극은 Vulcan XC-72의 탄소에 60wt%의 Pt-Ru(몰비 1:1)이 담지된 상업용 촉매에 Nafion solution을 첨가한 후 촉매 슬러리가 잘 분산되도록 교반하였다. Cathode 측의 촉매는 Pt 촉매상에서 Nafion 용액을 첨가한 후 교반하여 슬러리로 제조하였다.

탄소 종이 위에 활성 탄소층과 백금/탄소 촉매 층을 코팅하고 80°C의 온도에서 1시간 동안 건조시켰다. Nafion이 함침된 전극은 전처리된 Nafion 막을 사이에 넣고 hot pressing 법을 사용하여 접합 시켰다. hot pressing은 90°C로 가열된 판 위에 MEA를 위치시키고 125°C의 온도에서 100~200kgf/cm²으로 2분간 압착하여 MEA를 제조하였다.

3.2.3 스택 성능의 측정장치

연료전지 스택의 성능을 측정하기 위한 장치는 크게 연료 공급부, 스택 및 데이터의 계측 및 제어 부분으로 구성된다.

연료극의 연료인 메탄올은 순수한 증류수와 혼합하여 메탄올을 농도가 0.5 -4 M의 범위에서 제조하여 연료 저장기에 보관하였다가 유량의 조절이 0.001-9.999 ml/min의 범위까지 조절이 가능한 정량펌프(Shimadzu LC-10AT)를 통해 2.0M CH₃OH를 2ml/min의 유속으로 양을 연료극으로 공급하였다. 공기극의 연료로서는 공기 또는 산소를 이용하였고 반응에 필요한 양이 공기극으로 공급 되도록 MFC를 사용하여 조절하였다. 공기극은 연료의 유량이 산소의 경우에는 1L/min, 공기의 경우에는 10L/min으로 하였다. 스택의 성능 실험은 25-130°C의 온도 범위에서 0-3kgf/cm²의 게이지 압력에서 실험이 가능하고, 전류와 전압 특성은 Electronic Load Tester(KW320-0A)를 사용하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 스택 1의 성능

그림 1은 스택 온도가 25°C이고 연료극과 공기극에는 상압의 연료와 산소 혹은 공기가 공급되도록 제어하여 운전하였을 경우 10셀 스택 1의 전압-전류 특성을 나타낸 것이다. 연료극 연료는 2M의 메탄올을 4ml/min의 속도로서 공급하였고, 공기극에는 산소를 1L/min으로 공급하였다. 그림 1(a)에서 볼 수 있듯이 가장 높은 출력은 약 19.4W(4.3V@4.5A)를 얻을 수 있었다. 그림 1(b)는 공기극에 공기를 공급하여 얻은 스택 1의 전압-전류 및 출력 특성을 나타내고 있다. 이 때 연료극 연료는 2M의 메탄올을 4ml/min의 속도로서 공급하였고, 공기극 연료는 컴프레스에서 공급된 공기를 10L/min으로 공급하였다. 그림 1(b)에서 볼 수 있듯이 가장 높은 전기적 출력은 약 13.6W(3.02V@4.5A)를 얻을 수 있었다.

스택의 전류를 4.0A로 일정하게 하고 25°C에서 운전한 경우에 8번 셀의 전압이 스택의 다른 셀의 전압보다 낮은 것을 관찰 할 수 있다. 이는 공기극에서 생성된 물의 배출이 원활하지 못하여 물이 공기극 채널 내부 혹은 출구부위에 많이 고이게 되어 공기극 산소의 공급 유류에 흐름저항이 발생하여 공기극에서 공급되는 산소가 메탄올과 충분한 반응을 하지 못하는 것으로 판단되었다. 스택을 설계 제조하기 위해서는 스택에서 생성된 생성수의 원활한 배출에 많은 역점을 두어야 된다고 판단된다. 향후 이러한 현상을 방지하기 위한 가스 및

액체의 유로 설계가 보완되어야 할 것으로 여겨진다.

3.2 스택 2의 성능

그림 3(a)와 (b)는 스택 온도가 65°C이고 연료극과 공기극에는 상압의 연료와 산소 혹은 공기가 공급되도록 제어하여 운전하였을 경우 외부 매니폴드형 11셀 직접메탄을 연료전지 스택 2의 전압-전류 및 출력 특성을 나타낸 것이다. 연료극 연료는 2M의 메탄올을 4ml/min의 속도로서 공급하였고, 공기극에는는 컴프레스에서 공급된 공기를 10L/min으로 공급하였다. 그림에서 볼 수 있듯이 가장 높은 전기적 출력은 약 34.5W(4.1V@8.5A)를 얻을 수 있었다.

그림 3(a)와 3(b)는 스택을 상온, 40°C 및 65°C에서 운전하여 얻은 스택 2의 성능을 나타낸 것이다. 연료극 연료는 2M의 메탄올을 4ml/min, 공기극에는 산소를 1L/min 혹은 공기를 10L/min으로 공급하였다. 산소를 사용한 경우(그림 3(a))에 약 47W(5.2V@9A)의 최고 출력을 얻을 수 있었다. 공기를 사용한 경우(그림 3(b)에 상온, 40°C 및 65°C에서 각각 12.8W(3.2V@4A), 21.7W(3.6V@6A) 및 34.5W(4.1V@8.5A)의 최고 출력을 얻을 수 있었다.

그림 3(a)와 3(b)의 결과로부터 공기극에 산소 혹은 공기로 사용하였을 경우 성능 차를 나타내고 있는데, 이는 공기를 사용하였을 경우가 산소를 연료로 사용한 경우보다 높은 과전압을 나타내기 때문이다. 또한 공기를 사용한 경우에는 산소보다 전극으로 확산되어 들어가는 공기의 확산이 느리기 때문이다.

그림 4는 스택 2에 공기 혹은 산소를 공급하면서 스택 전류를 4.0A로 일정하게 하고 65°C에서 운전하였을 때 스택의 각 셀이 나타내는 전압을 측정하여 나타낸 것이다. 여기에서 6번 셀의 전압이 스택의 다른 셀의 전압보다 낮은 것을 관찰 할 수 있다. 가장 양호한 셀은 4번 셀인 것을 알 수 있다. 이들 4번 셀과 6번 셀의 경우 공기를 사용하였을 때 각각 0.53V와 0.42V, 산소를 사용하였을 때 0.62V와 0.46V를 나타내었다.

4 결론

본 연구는 100W급 DMFC 스택의 개발을 목표로 하는 연구 개발 계획 중에서 1차 연도에서 이루어진 30W급 DMFC 스택의 개발에 대한 내용이다. 한국에너지기술연구원에서 수행한 직접메탄올 연료전지 스택 개발의 1차년도 내용을 요약하여 정리하면 다음과 같다.

- ① 고성능 직접메탄올 연료전지 스택의 성능을 향상시킬 수 있는 전극제조 공정을 확립.
- ② 스택 성능 측정 장치를 자체 설계 제작하여 연구에 적용.
- ③ 다양한 외부 매니폴드 및 내부 매니폴드형 스택 1과 스택 2를 설계, 제작 운전
- ④ 위의 연구 결과를 토대로 1차년도 연구 목표인 30W급 스택 개발의 목표를 달성.

공기 사용: 34.5W (4.1V@8.5A), 산소 사용: 47W (5.2V@9.0A).

앞으로도 내부 매니폴드식과 외부 매니폴드식의 2가지 스택을 제작하여 연구 목표인 100W급 DMFC 스택을 개발하기 위하여 고성능 MEA 개발, 스택 설계 기술 개발, 스택 실링 및 적층 기술 향상에 주력하는 연구개발을 계속적으로 진행시킬 계획이다.

사 사(Acknowledgement)

본 연구는 산자부 에너지자원기술개발사업(대체에너지)의 연구비 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

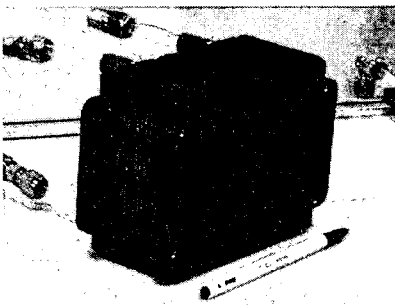
5. Reference

- [1] H. Dohle et.al., Journal of power Sources, 106, 313-322 (2002).
- [2] K. Scott et.al., Journal of power Sources, 79, 43-59 (1999).
- [3] A.K. Shukla et.al., J. Appl. Electrochem., 29, 129-132 (1999)
- [4] L.K. Verma et.al., Journal of power Sources, 86, 464-468 (2000).

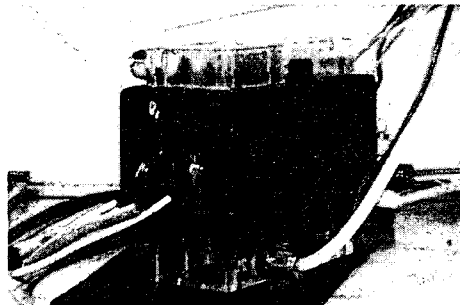
표 1. 다양한 형태의 직접메탄올 연료전지 스택 특성

항목	스택 형태의 특성			
	외부 1*	내부 1	외부 2	내부 2
◇ 셀 수 ◇ 전극 면적	◇ 10 ◇ 75cm ² (6.6x11.4cm)	◇ 5 ◇ 66cm ² (5.8x11.4cm)	◇ 11 ◇ 73cm ² (6.3x11.6cm)	◇ 10 ◇ 60cm ² (5.1x11.8cm)
◇ 촉매 연료극 공기극 ◇ 분리막 ◇ 전극 지지체 ◇ 바이폴라 플레이트 ◇ 전류집전체	◇ 40wt.%Pt-20wt.%Ru/C, 5.0mgPt/cm ² ◇ 60wt.%Pt/C, 5.0mgPt/cm ² ◇ Nafion 115 ◇ Carbon paper ◇ 흑연 플레이트(ST-3) ◇ Cu(Gold or Au coating)			

*외부 1: 외부 매니폴드형 스택 1

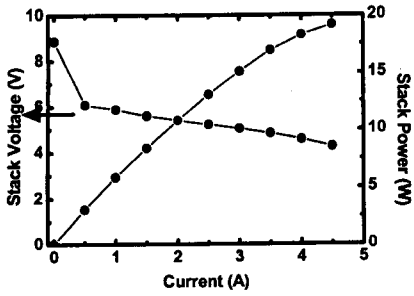


(a)

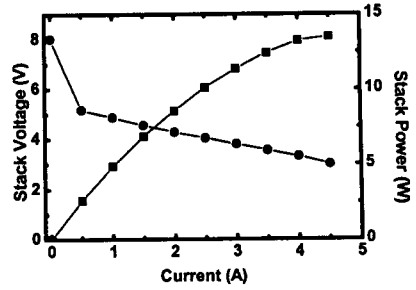


(b)

그림 1(a), (b). 외부 매니폴드형 30W급 직접메탄올 연료전지 스택 1(a)과 스택(b)



(a)



(b)

그림 2 (a), (b). 10셀 외부 매니폴드형 직접메탄올 연료전지 스택 1의 전압-전류 특성.

(a) 산소/2M CH₃OH = 1/1 atm, (b) 공기/2M CH₃OH = 1/1 atm, 스택 온도: 25°C.

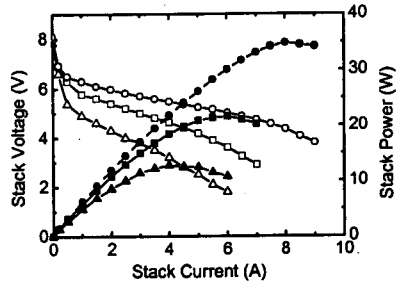
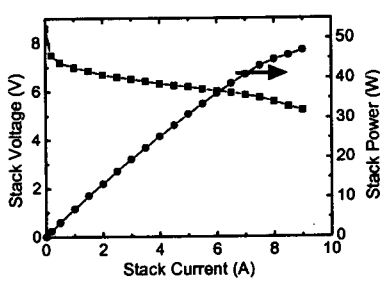


그림 3. 11셀 외부 매니폴드형 직접메탄올 연료전지 스택 2의 성능 특성.

(a): 산소, (b): 공기 사용, 스택 온도(65°C: ○, ●, 40°C: □, ■, 25°C: △, ▲), 2M CH₃OH/공기, 산소 = 1/1 atm.

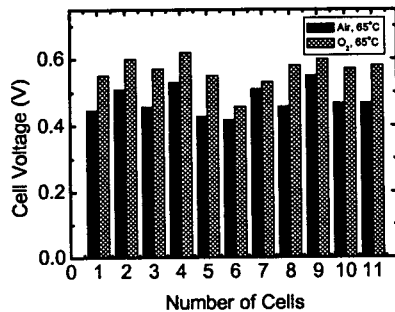


그림 4. 일정한 전류(4 A)에서 측정된 11셀 외부 매니폴드형 스택 2의 셀 전압 (스택 온도: 65°C, 2M CH₃OH/공기 혹은 산소 = 1/1 atm).