

자동차용 PEMFC의 유로설계에 관한 연구

Research of Flow Field Design for Automotive PEMFC

유승을, 구영모, 정선경, 김명환
자동차부품연구원 환경소재연구센터

1. 서론

환경오염의 원인인 CO₂ 규제에 의하여 저공해 자동차의 개발이 요구되고 있으며 새로운 에너지원 형태로 연료전지 자동차(FCV: Fuel Cell Vehicle)가 급부상하고 있다. 연료전지 자동차는 내연기관에 비하여 에너지 효율이 높고 이산화탄소 등의 대기오염물질의 방출을 줄일 수 있으며, 열기관에 비하여 낮은 온도에서 작동하기 때문에 질소산화물의 발생량을 무시할 수 있을 정도로 저감시킬 수 있다는 장점을 가지고 있어 친환경 자동차의 동력원으로 개발되고 있다.

국내에서는 연료전지 자동차의 핵심기술인 스택설계 및 운전에 대한 독자적인 기술 확보가 선진국에 비하여 미흡한 상태이다. 특히, 국외에서도 스택설계나 운전에 대한 특허를 지속적으로 출원하고 있지만 기술적인 상세한 내용은 기피하고 있다. 본 연구에서는 PEMFC 스택 설계 중 내부압력차가 큰 경우와 작은 경우를 비교한 유로 디자인 연구를 통해 내부압력차에 의한 성능변화를 실험적으로 분석하고자 하였다.

2. 실험방법

연료전지 스택의 성능을 좌우하는 요인들은 식(1)의 연료전지 전압이론식에서 보는 것과 같이 온도, 연료기체(수소, 공기)의 압력 및 물의 압력이 있으며 식(2)의 연료전지 손실식과 같이 촉매활성, 촉매층/기체확산층(GDL: Gas Diffusion Layer)의 확산도, 분리판/촉매/GDL/ 전해질 막의 저항 및 이온전도도, 기체반응 등이 있다.

$$E_{cell} = E_{O_2} - E_{H_2} = E_0 + \frac{RT}{2F} \ln\left(\frac{\alpha P \cdot \beta P^{1/2}}{\delta P}\right) \quad (1)$$

(E_{cell} = 연료전지 전압, E_0 = 1.229 V, αP = 수소분압, βP = 산소분압, δP = 수증기분압)

$$\eta = \eta_A + \eta_D + \eta_\Omega + \eta_R \quad (2)$$

(η = Total overvoltage, η_A = activation, η_D = diffusion, η_Ω = resistance, η_R = reaction)

스택(stack) 설계에 의해 조절이 가능한 변수는 크게 온도, 압력 두 가지로 나눌 수 있다. 식(1), (2)의 모든 인자를 세분화 하면 온도와 압력이 대부분의 인자에 영향을 주는 변수에 속한다. 따라서 스택설계의 최적화는 연료전지 성능을 최적화하는 것과 같다. 스택의 설계를 위한 변수인자 연구는 스택의 기본단위인 단전지(unit cell)를 이용하여 연구하였다. 그림 1

과 같이 연료의 유입 또는 배출되는 스택 입·출구 압력차(ΔP_{in-out})에 의하여 성능변화를 보이며 스택을 운전하기 위한 운전장치(BOP: Balance of Plant)의 효율이 변화한다. 이러한 현상을 분석하기 위하여 본 연구에서는 최대·최소 ΔP_{in-out} 에 의해 설계된 25 cm² 단전지의 압력에 의한 영향과 운전 온도에 의한 영향을 분석하고자 하였다.

단전지 설계는 유체가 지나가는 면(flow field: GDL과 접촉되어 있으며 유로의 골과 산을 형성하는 면, active area라고도 함)을 그림 2와 같이 유로수(channel)가 1개, 5개인 것을 기준으로 하였고 유로패턴에 변형을 주어 내부압력이 낮은 A type과 내부압력이 높은 B type을 기준하여 제작하였다. 즉 25 cm² 단전지 디자인은 1A, 1B, 5A, 5B로 4가지 형태이며 1B는 1A보다 ΔP_{in-out} 가 높은 디자인이며 5B는 5A보다 ΔP_{in-out} 가 높은 디자인이다. 유로의 골과 산 간격 및 깊이는 모두 1 mm로 디자인 되었다.

유로 디자인이 같은 두개의 분리판을 이용하여 단전지를 제작하였으며 유로입구와 출구에서의 ΔP_{in-out} , I-V curve 및 기체이용률에 따른 성능을 각각의 분리판 디자인을 중심으로 비교하였다. 연료기체로 수소와 공기를 이용하였으며 백금촉매 함침량은 anode, cathode 각각 0.4 mg/cm² 이다.

3. 결과 및 고찰

분리판 1A, 1B, 5A, 5B에서 수소 및 공기를 이용하여 각각의 분리판 입·출구에서 압력을 측정하였다. 그림 3은 가습되지 않은 수소, 공기기체 유량에 따른 각각의 분리판 ΔP_{in-out} 를 나타낸 것이고, 그림 4는 그림 3과 같은 조건에서 모델링한 결과이다. 실험에 의한 ΔP_{in-out} 와 모델링에 의한 ΔP_{in-out} 가 거의 유사하였다. 모델링이 이루어진 데이터를 기준으로 새로운 유로설계를 하였을 때 단전지를 제조하지 않고 모델링을 통하여 유로의 ΔP_{in-out} 를 예측할 수 있다는 것으로 여겨지며 이것을 통한 유로설계에 영향을 주는 압력인자의 해석이 가능할 것으로 판단된다. 단전지 시험에 이용되는 수소공급량 0~500 cc/min에서의 분리판 5A와 5B는 ΔP_{in-out} 가 없었으며 수소공급량 500 cc/min을 기준으로 하였을 때 분리판 1A, 1B, 5A, 5B의 ΔP_{in-out} 는 각각 0.05 bar, 0.06 bar, 0.02 bar, 0.02 bar로 측정되었다. ΔP_{in-out} 가 큰 1B의 경우 성능은 가장 우수할 것으로 예상되지만 단전지가 아닌 스택에서는 성능평가 시 초기유량을 전류량 변화에 대하여 양론비로 공급하지 않으면 압력상승으로 인한 연료기체 누출로 안전상 문제가 야기될 수 있을 것으로 여겨진다.

그림 5는 분리판 5B의 manifold의 outlet을 공기 300 cc/min을 공급한 경우에 유속분포를 모델링한 결과이다. Y축으로 맨 위에 위치한 유로의 유속분포가 다른 4개의 유로에 비하여 유속이 다소 작게 나왔다. 여러 유로를 가진 분리판을 이용한 성능시험에서 flooding과 같은 현상이 생겼을 시에 유속분포가 불안정할수록 성능변화가 더욱 심화될 가능성이 있을 것으로 사료된다.

단전지 온도변화(50, 70, 80℃)와 내부압력변화(gauge pressure, $P_g=0, 14.7$ psi)에서 분리판 1A, 1B, 5A, 5B를 이용한 단전지의 성능을 표 1에 전류밀도(mA/cm^2)와 전력밀도(W/cm^2)로 나타내었다. 성능시험 중 전자부하기의 운전조건이 CC(Constant Current) mode이므로 근사치의 전압을 기준하였다. 표 1에 나타낸 전류밀도 및 전력밀도는 실제 데이터와 비교하여 최대 $\pm 0.46\%$ 의 오차가 있다. 분리판 1B로 구성된 단전지가 각 전압, 압력 및 온도에서 가장 높은 성능을 보였으며 5B가 가장 낮게 나왔다. 특히 5B는 단전지 온도가 80℃, 0.6 V, 0 psi(gauge pressure)에서 가장 낮은 전류밀도 0.198 W/cm^2 를 나타냈으며 시험 데이터 중 가장 불안정한 형태로 성능이 측정되었다.

표 2는 수소기체 양론비를 1.2, 1.5, 2.0, 공기기체 양론비를 1.5, 2.0, 2.5로 변화시켰을 때 일정전류량에서 전압의 평균값과 전압 안정성을 알아보기 위한 전압편차 평균값을 나타낸 것이다. 단전지 1A, 5A, 5B를 사용하였으며 상압, 70℃에서 측정하였다. 전체 범위에서 1A의 경우 안정적인 성능을 보였으며 5A는 1A보다 성능은 다소 높으나 전압편차 평균값은 보다 높게 나타났다. 단전지 5B는 매우 불안정한 성능을 보였으며 500 mA/cm^2 , 수소/산소 기체 양론비 2.0/1.5이하에서는 음의 전압을 나타내었다. 즉 ΔP_{in-out} 이 커지고 유로수가 많아지면 성능이 불안정하다는 것을 알 수 있었다.

본 연구를 통하여 내부압(back pressure)이 커지는 경우에는 성능이 상승하지만 ΔP_{in-out} (단전지 입·출구)가 커지는 경우에는 1A, 1B와 같이 성능이 상승하는 경우와 5A, 5B와 같이 성능이 낮아지는 경우가 있다는 것을 알 수 있었다. 그리고 성능은 거의 같게 나오나 전압편차가 안정적인 1A와 5A의 경우가 나타났다. 실험에 의해 이러한 원인인자를 해석하기에는 너무나 부족한 면이 있어 이를 해석하기 위하여 현재 분리판, GDL(Gas Diffusion Layer), 전류밀도 등의 연계에 대한 모델링을 추가적으로 진행 중에 있다. 특히, 분리판 1A를 적용하면 5B와 비슷한 구조이므로 연료전지 자동차 스택 설계를 위해 5B에 대해서 집중적으로 해석을 할 계획이다.

4. 결론

- (1) 분리판별 모델링 결과 유로수가 많을수록 ΔP_{in-out} 가 낮게 나왔으며, A형태에 비하여 B형태의 ΔP_{in-out} 가 높게 나타났다. 300 cc/min의 경우에 1B가 수소 및 공기기체 ΔP_{in-out} 가 각각 0.02 bar(P_g), 0.09 bar(P_g)로 다른 디자인에 비하여 가장 큰 압력차를 보였다. 실제 운전에서 1B의 경우 고유량으로 공기기체를 공급하였을 때 내부압력이 2 bar(P_g)이상으로 상승하여 저전류 영역에는 높은 압력에서 견딜 수 있는 스택체결이 필요할 것으로 사료된다.
- (3) 단전지 온도 및 압력(back pressure)이 상승함에 따라서 연료전지 성능이 증가하였다. 1A, 1B, 5A, 5B를 이용한 단전지 성능은 0 psi(P_g), 80/70/75℃, 0.6 V에서 전력밀도가

각각 0.421 W/cm², 0.692 W/cm², 0.482 W/cm², 0.216 W/cm²로 나타났으며 14.7 psi(P_g), 80/70/75°C, 0.6 V에서 전력밀도가 각각 0.722 W/cm², 0.992 W/cm², 0.692 W/cm², 0.305 W/cm²로 나타났다. 단전지 5B 경우 온도와 압력에 대하여 불안정한 성능을 나타내었다. 이러한 결과는 유로수가 많고 ΔP_{in-out}가 크기 때문에 flow field내 각각의 유로에서 유속분포차가 생겨 나타나는 현상으로 사료되며, 세부적인 분석을 위해 flow field 유로간의 압력분포에 대한 시험과 모델링이 동반되어야 할 것으로 여겨진다.

- (4) 기체공급량에 따른 성능을 1A, 5A, 5B에서 측정하였다. 수소공급량보다는 공기공급량에 의해 성능변화가 크게 나타났다. 1A의 경우 기체공급량 변화에 대해서 대부분의 전압편차 평균값이 0.001이하로 가장 안정한 전압변동을 나타내었다. 5A는 공기공급량 2.5에서는 안정된 형태를 보이지만 그 이하의 공기공급량에서는 전압변동이 불안정하게 나타났다. 따라서 유로수가 증가하는 분리판 디자인에서는 유로수가 적은 디자인에 비하여 높은 공기공급량을 필요로 함을 알 수 있었다.
- (5) 내부압(back pressure)이 커지는 경우에는 성능이 상승하지만 내부압력차(단전지 입·출구)가 커지는 경우에는 1A, 1B와 같이 성능이 상승하는 경우와 5A, 5B와 같이 성능이 낮아지는 경우가 있다는 것을 알 수 있었다.

참고문헌

1. James Larminie and Andrew Dicks, Fuel Cell Systems, John Wiley & Sons (2000).
2. Oliver J. Murphy, Alan Cisar and Eric Clarke, Electrochimica Acta, 43, 3829 (1998).
3. C. E. Borrini-Bird, J. Power Sources, 61, 33 (1996).
4. A. J. Appleby and F. R. Foulkes, Fuel Cell Handbook, Van Nostrand Reinhold (1993).

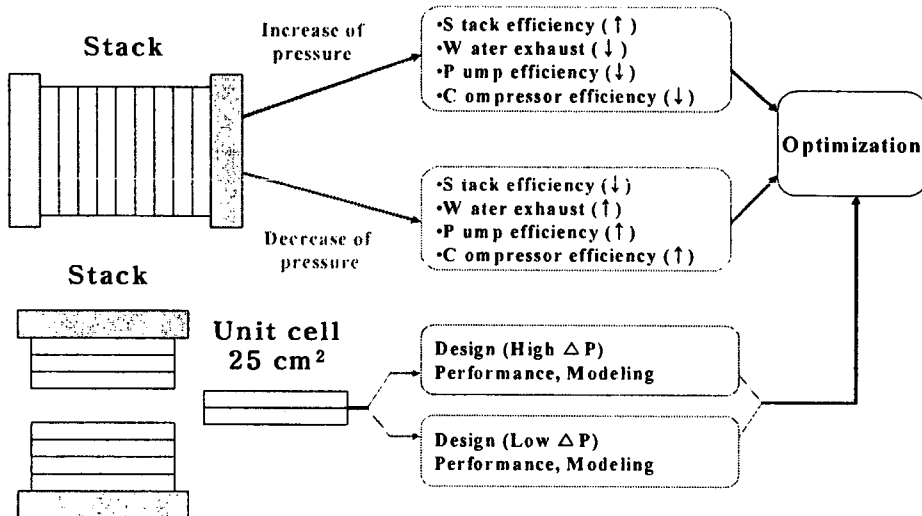


그림 3. 스택 최적화를 위한 설계접근의 개요

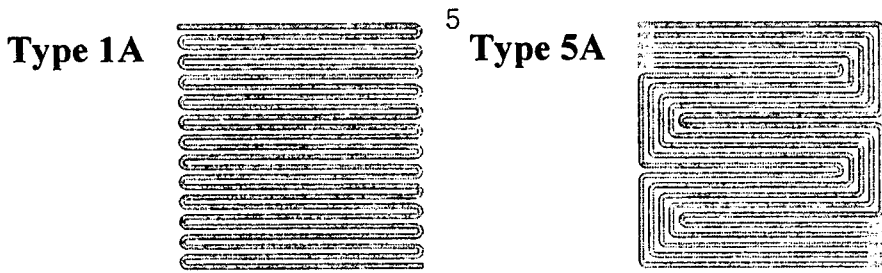


그림 4. 분리판(25 cm²) 유로 디자인

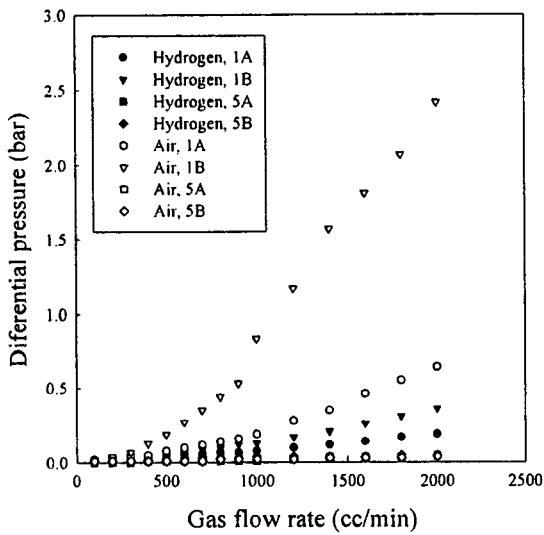


그림 6. 분리판 디자인별 내부압력차(실험)

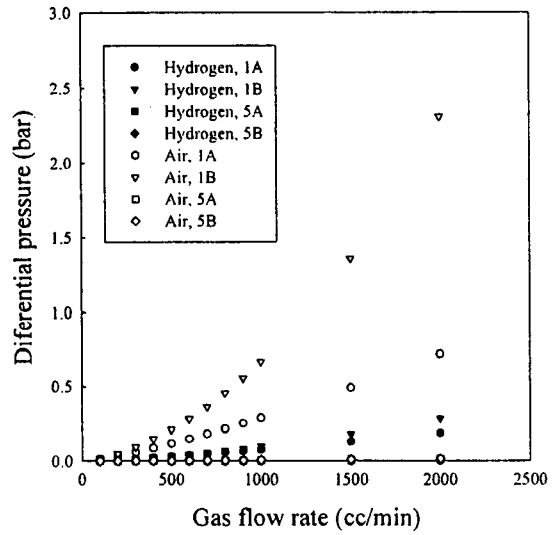


그림 7. 분리판 디자인별 내부압력차(모델링)

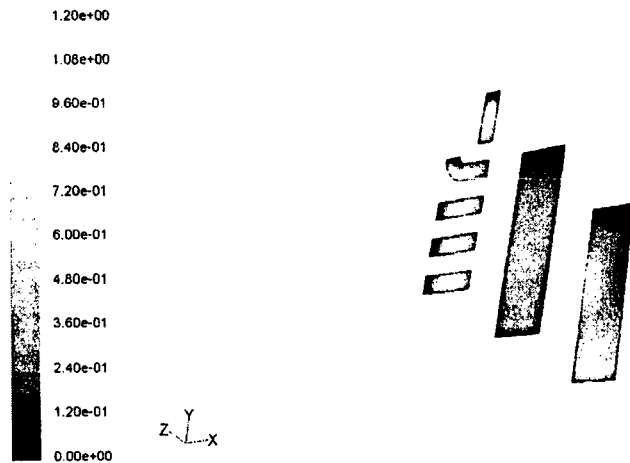


그림 5. 분리판(5B) manifold outlet 유속분포(m/s)

표 1. 단전지별 온도 및 압력 변화에 따른 전류밀도(mA/cm²) 및 전력밀도(W/cm²)

Pressure		P _{gauge} = 0 psi				P _{gauge} = 14.7 psi				
Plate type		1A	1B	5A	5B	1A	1B	5A	5B	
0.8 V	50°C	mA/cm ²	92	151	151	121	181	452	302	165
		W/cm ²	0.074	0.121	0.121	0.097	0.145	0.361	0.242	0.132
	70°C	mA/cm ²	81	202	151	131	261	452	401	215
		W/cm ²	0.065	0.161	0.121	0.1048	0.209	0.361	0.321	0.172
	80°C	mA/cm ²	92	351	165	102	242	452	452	401
		W/cm ²	0.0735	0.281	0.132	0.0813	0.193	0.361	0.361	0.321
0.7 V	50°C	mA/cm ²	302	501	401	401	601	951	601	310
		W/cm ²	0.212	0.351	0.281	0.281	0.422	0.666	0.421	0.217
	70°C	mA/cm ²	351	652	501	260	701	1101	802	401
		W/cm ²	0.246	0.457	0.351	0.182	0.491	0.771	0.562	0.282
	80°C	mA/cm ²	401	851	501	251	701	1051	1051	802
		W/cm ²	0.281	0.597	0.351	0.176	0.491	0.737	0.737	0.562
0.6 V	50°C	mA/cm ²	651	902	701	651	951	1451	802	401
		W/cm ²	0.391	0.542	0.421	0.391	0.571	0.872	0.601	0.241
	70°C	mA/cm ²	701	1152	802	360	1201	1650	1152	509
		W/cm ²	0.421	0.692	0.482	0.216	0.722	0.992	0.692	0.305
	80°C	mA/cm ²	802	1401	802	330	1251	1601	1451	1101
		W/cm ²	0.482	0.842	0.482	0.198	0.752	0.962	0.872	0.662

표 2. 일정 전류량에서 기체공급량에 의한 분리판별 평균전압 및 전압편차 평균값

전류 밀도	기체공급 양론비 (A/C)	평균전압 (V)			전압편차 평균값 (V)		
		1A	5A	5B	1A	5A	5B
100 mA/cm ²	2.0/2.5	0.8093	0.8186	0.7835	0.000245	0.002362	0.001513
	1.5/2.5	0.8031	0.8081	0.7781	0.000236	0.003827	0.001841
	1.2/2.5	0.8000	0.8026	0.7750	0.000264	0.004510	0.001817
	2.0/2.0	0.7964	0.7803	0.7700	0.000397	0.009329	0.005873
	1.5/2.0	0.7948	0.8003	0.7717	0.000402	0.003316	0.003249
	1.2/2.0	0.7934	0.7979	0.7688	0.000736	0.008526	0.003609
	2.0/1.5	0.7886	0.7880	0.7426	0.000716	0.009073	0.018024
	1.5/1.5	0.7880	0.7856	0.7440	0.000778	0.013437	0.015065
	1.2/1.5	0.7872	0.7772	0.7464	0.000771	0.018679	0.014300
300 mA/cm ²	2.0/2.5	0.7339	0.7458	0.6741	0.000247	0.001491	0.002532
	1.5/2.5	0.7362	0.7437	0.6667	0.000245	0.001484	0.002269
	1.2/2.5	0.7362	0.7431	0.6554	0.000218	0.001221	0.002445
	2.0/2.0	0.7323	0.7389	0.6457	0.000407	0.002427	0.004437
	1.5/2.0	0.7322	0.7381	0.6423	0.000397	0.002416	0.004377
	1.2/2.0	0.7320	0.7377	0.6380	0.000321	0.002433	0.004551
	2.0/1.5	0.7265	0.7172	0.6176	0.000746	0.008151	0.012252
	1.5/1.5	0.7254	0.7199	0.6275	0.001049	0.008233	0.010593
	1.2/1.5	0.7232	0.7247	0.6273	0.000733	0.008030	0.010096
500 mA/cm ²	2.0/2.5	0.6934	0.6939	0.4984	0.000191	0.001438	0.006194
	1.5/2.5	0.6944	0.6934	0.5138	0.000212	0.001401	0.005127
	1.2/2.5	0.6955	0.6934	0.4571	0.000271	0.001530	0.007401
	2.0/2.0	0.6852	0.6887	0.3886	0.000380	0.002562	0.015622
	1.5/2.0	0.6836	0.6882	0.0629	0.000439	0.002671	0.023681
	1.2/2.0	0.6667	0.6869	0.0192	0.000527	0.002642	0.014319
	2.0/1.5	0.6512	0.6733	-0.0287	0.001348	0.009080	0.004798
	1.5/1.5	0.6545	0.6755	-0.0467	0.001246	0.009355	0.004712
	1.2/1.5	0.6563	0.6661	-0.0697	0.001633	0.012133	0.007134