

상온용 직접메탄올 연료전지 스택의 성능 및 특성 분석

배병찬, 김대진, 이송기*, 이재영, 정성택*, 하홍용
한국과학기술연구원 연료전지센터, 인하대학교 화학공학과*

Performance and Characterization of Direct Methanol Fuel Cell Stack

Byungchan Bae, Daejin Kim, Songki Lee*, Jaeyoung Lee, Sung Taik Chung*,
Heung Yong Ha,

Fuel Cell Research Center, Korea Institute of Science and Technology
Department of Chemical Engineering, Inha University*

1. 서론

직접 메탄올 연료전지가 휴대용 전원이나 자동차용 배터리 등의 전원으로 사용되기 위해서는 단위전지의 성능 향상뿐만 아니라 단위전지의 적층형인 스택 기술의 개발 등이 필요하다 [1,2]. 이를 위해 전해질 막-전극 집합체(MEA) 제조와 소형 스택 기술 개발이 활발히 이루어져 왔고 최근에 많은 해외의 연구진 및 기관들이 연료전지 스택의 프로토타입을 발표하고 있으나, 스택의 운전 조건 등에 따른 자료는 거의 없는 실정이다. 또한, 발표된 연구들은 대부분 스택온도를 일정하게 유지시킨 상태에서 수행되어 온도조절 장치가 없는 실제 휴대용 전원에 관한 연구가 모색되어야 한다 [3]. 따라서 본 연구에서는 실제 휴대용 전원의 조건과 동일하게 연료전지 스택을 제조한 후 그 운전 특성을 분석하고자 하였다.

2. 실험

2.1. MEA의 제조

고분자 전해질 막으로는 상용으로 시판되고 있는 DuPont사의 Nafion 115를 사용하였다. 사용하기 전에 전해질 막을 초순수에 담가 80 °C에서 1시간동안 2-3회 처리한 후, 5 wt % 과산화수소 수용액으로 80 °C에서 1시간동안 세척하여 1M 황산 수용액에서 1시간 동안 처리한 후 다시 초순수로 2-3회 세척한 후, 전해질 막을 증류수에 보관하여 사용하였다.

전극을 제조하기 위한 지지체는 PTFE가 20 wt% 함유된 E-TEK사의 탄소전(type A)에 미세 탄소 분말(Vulcan XC-72R)을 이용한 확산층을 제조한 후 도포시켜 사용하였다. 촉매층은 촉매와 Nafion® 함유 용액을 사용하여 촉매잉크를 제조한 후 기체확산층에 형성된 전극위에 스프레이 도포법을 이용하여 제조하였다. 촉매 잉크는 음극 촉매의 경우 Pt-Ru black (Johnson Matthey Co.)을 양극 촉매의 경우 Pt black (Johnson Matthey Co.)을 5 wt % Nafion® 용액과 일정량의 용매를 혼합한 후 초음파 처리하여 제조하였고, 음극의 Pt-Ru black 및 양극의 Pt black 촉매 도포량은 모두 6 mg/cm²로 하였다. 전해질 막-전극 집합체(membrane and electrode assembly, MEA)는 140 °C, 80 kg/cm²로 10분간 핫프레싱하여 제조하였다.

2.2. 연료전지 스택의 제조

연료전지 스택은 MEA를 이용한 단위전지를 여러 장 적층시킨 형태로 제조하였다. Fig 1에 나타낸 바와 같이 메탄올과 산소 혹은 공기의 공급을 위한 두 장의 metal plate, 전류를 집전할 수 있는 2장의 금 코팅된 bus plate, 생성된 전자를 bus plate로 전달하여 주고 받는 두 장의 end plate, 여러 장의 스택을 구성할 수 있도록 중간에 들어가는 bipolar plate 그리고 실제 plate 사이에서 반응을 통해 전력을 생산할 수 있는 전해질 막-전극 접합체(MEAs)로 구성하여 총 면적 35cm²의 8 cell의 스택을 제작하였다.

단위전지와 바이폴라 스택의 성능을 측정하기 위해 electric loader (Daegil electronics, EL-200P, Korea)를 사용하였고, 바이폴라 스택 내의 단위전지들의 전압을 측정하기 위하여 multimeter (Fluke Co., USA)를 사용하였다. 또한 스택 내의 온도분포를 알아보기 위해서 multi-point selector를 사용하였다.

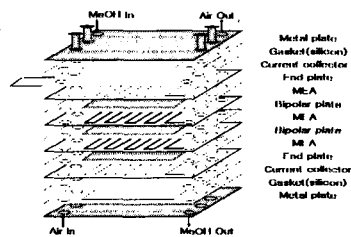


Fig 1. A schematic diagram of DMFC stack.

3. 결과 및 고찰

3.1. 메탄올 농도와 전류 발생량에 따른 스택 온도 분포

본 연구에서의 스택은 온도 조절장치가 없는 관계로 공급물과 반응열의 의하여 온도 변화가 일어난다. Fig. 2에 서로 다른 메탄올 용액에서의 전류생성량에 따른 스택 온도분포를 나타내었다.

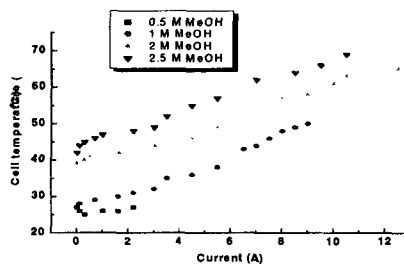


Fig. 2. Stack temperature variation according to MeOH concentration and current density.

본 스택에서 일어나는 반응은 크게 3가지로 나눌 수 있다; 1) 음극에서의 메탄올 전기화학적 산화반응 2) 양극에서의 산소 환원 반응 3) 양극에서의 메탄올 투과에 의한 메탄올의 화학적 산화반응. 1번의 메탄올의 전기화학적 산화반응은 흡열반응이고, 2,3번의 반응은 발열반응이므로 공급되는 메탄올 농도에 따라서 스택의 온도가 변하게 된다.

OCV(open circuit voltage) 상태에서는 음극에서 양극으로 메탄올이 넘어가(메탄올 크로스오버) 양극에서 메탄올의 화학적 산화반응을 일으키게 되어 스택의 온도가 상승하게 된다. 메탄올의 농도가 증가함에 따라 스택의 온도는 계속 증가하여 2M에서는 약 40°C의 값을 보여주는데, 0.5M과 1M에서는 메탄올의 농도가 낮아 스택의 온도가 상온과 거의 일정하게 유지됨을 알 수 있다.

전류를 생성시키기 시작하면 앞에서 언급한 3가지 반응이 동시에 일어나게 된다. 음극에서의 전기화학적 산화반응은 흡열 반응이므로 스택의 온도를 감소시키는 역할을 하지만, 양극에서의 산소 환원반응과 메탄올의 화학적 산화반응에 의하여 스택의 온도가 상승하게 된다. 전류를 증가시키에 따라서 스택의 온도는 계속 상승하여 2.5M 메탄올 용액 경우에 10A(285 mA/cm²)의 높은 전류밀도에서 약 70°C까지 스택 온도가 증가하였다.

3.2. 메탄올/공기 유속에 따른 스택 성능

스택의 경우에 메탄올과 공기의 유속에 따른 8 cell 스택의 성능과 전지 당 평균 전력밀도를 Fig. 3과 4에 나타내었다. Fig. 3과 4로부터 최적의 메탄올과 공기의 유속은 10.5 A(300 mA/cm²)의 전류에서 20 cc/min 2M MeOH(4 stoichiometric ratio)과 6 slm(standard liter/min) dry air(3 stoichiometric ratio)이었다. Fig. 3으로부터 2M MeOH 유속이 20 cc/min를 초과하면 상온으로 공급되는 메탄올이 스택의 온도를 감소시켜 반응의 활성을 떨어뜨리기 때문에 스택 성능이 감소하는 것을 볼 수 있다. Fig. 4로부터 6 slm 이하의 dry air가 공급되면 양극 반응물의 결핍으로 인해 스택 성능이 낮아짐을 알 수 있다. 따라서, 20 cc/min 2M MeOH과 6 slm의 dry air의 조건에서 8 cell 스택의 경우 최대 20 W의 전력을 생산할 수 있었다.

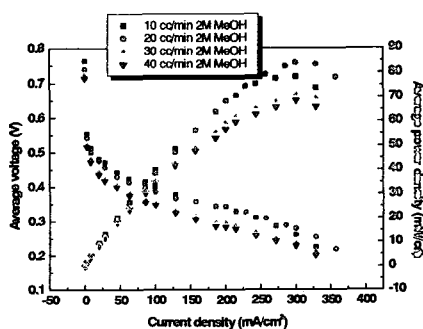


Fig. 3. Stack power density (upper) and average cell power density(below) with varying dry air flow rate at 20cc/min according to 2M MeOH flow rate.

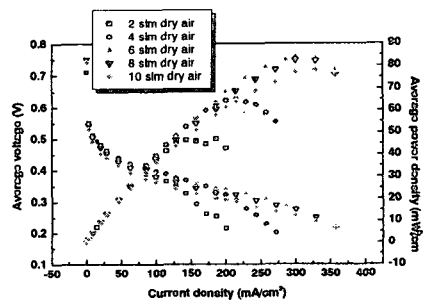


Fig. 4. 8 cell stack power(upper) and average cell power density(below) with varying dry air flow rate at 20cc/min 2M MeOH.

3.3. 스택 내 단위전지의 전력밀도 분포

직접 메탄올 연료전지 스택은 단위전지와는 달리 균일한 반응물 공급과 일정한 전류의 생성이 힘들다. Fig. 5에 300 mA/cm²의 일정 전류밀도에서 스택을 구성하는 각각의 단위전지의 전력밀도를 나타내었다. Fig. 5로부터 5, 6번 전지의 경우에 가장 좋은 전지 성능을 가진 것을 볼 수 있는데 이는 음극과 양극 반응물이 다른 흐름방향(counter flow)을 가지고 있기 때문에 스택의 중간에서 가장 좋은 전지 성능을 가진다고 볼 수 있다. 최고의 성능은 약 95 mW/cm²를 가진 반면, 8번 전지의 경우에는 가장 낮은 성능인 70 mW/cm²을 보여주었다. 이러한 전력밀도의 차이는 스택 내에서의 반응물의 불균일한 분포 때문이다. 즉, 상대적으로 공기의 흐름은 많고, 메탄올의 공급이 불안정하기 때문에 현격한 성능 차이를 보인다고 할 수 있다.

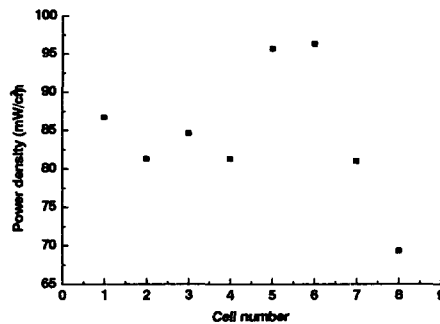


Fig. 5. The distribution of power density in the 8 cell stack at 300 mA/cm².

4. 결 론

본 연구에서는 휴대용 전원 구동을 목적으로 외부 온도조절 장치, 가습장치가 필요 없는 상온 무가습용 직접메탄올 연료전지 MEA와 바이폴라 스택에 관한 운전조건을 분석하여 20 cc/min 2M MeOH과 6 slm dry air 조건에서 20 W급의 스택 성능을 얻었다. 8 cell 스택에서는 39~ 67°C 정도의 스택온도가 증가함에 따라 성능에 가장 큰 영향을 주는 요인으로 작용했고, 반응물의 분포가 불균일하여 스택을 구성하는 단위 전지사이에 불균일한 성능 차이가 관찰되었다.

5. 참고문헌

1. Larminie, J. and Dicks, A., "Fuel Cell Systems Explained", John Wiley & Sons, Ltd, pp 64-65 (2000).
2. Hirschenhofer, J. H., Stauffer, D. B. and Engleman, R. R. "Fuel Cells : A Handbook, Business/Technology Books", p. 3-17 and p. 5-23 (1995).
3. 백동현, 정두환, 전문석, 이봉도, 이병록, 송락현, 신동열, 김혁년, 박명석, "40W급 직접 메탄올 연료전지 스택개발", 연료전지 심포지움 논문집, 39-46 (2003).