

## PEM 연료전지의 단순화된 공기극 채널 내 단일 물방울의 성장 및 이동 특성에 대한 실험적 연구

김 보경<sup>1)</sup>, 김 한상<sup>2)</sup>, 민 경덕<sup>3)</sup>

### Experimental investigation of growth and transport behavior of single water droplet in a simplified channel of PEM fuel cell

Bokyung Kim, Han-Sang Kim, Kyoungdoug Min

**Key words** : Microchannel(마이크로채널), PEM fuel cell(고분자전해질형 연료전지), Working temperature(작동 온도), Flow velocity(유동 속도), Contact angle(접촉각)

**Abstract** : To investigate the characteristics of water droplet on the gas diffusion layer from both upper-view and side-view of flow channel, a rig test apparatus was designed and fabricated with L-shape acryl plate in a 1 mm x 1 mm micro-channel. This experimental device is used to simulate the single droplet growth and its transport process under fuel cell operating condition. As a first step, we investigated the growth and transport of single water droplet with working temperature and air flow velocity. The contact angle and its hysteresis of water droplet at departing moment are measured and analyzed. It is expected that this study can provide the basic understanding of liquid water droplet behavior in gas flow channel and GDL interface during the PEM fuel cell operation.

#### Nomenclature

H : dimensionless droplet height based on channel height

$\theta_A$  : advancing contact angle (degrees)

$\theta_R$  : receding contact angle (degrees)

$\theta_A - \theta_R$  : contact angle hysteresis (degrees)

#### 1. 서 론

연료전지는 기존의 동력 장치들에 비해 높은 효율을 낼 수 있고 청정 에너지를 이용한 동력원이라는 측면에서 많은 관심이 집중되고 있으며, 이에 따른 연구가 활발히 진행 중이다. 그 중 고분자전해질형 연료전지는 자동차에 사용될 가장 실현 가능성 높은 동력원으로 주목받고 있다. 그런데, 고분자전해질형 연료전지의 생성물인 물이 부족한 경우, 전해질 막의 이온 전도도를 낮추어

연료전지의 성능을 저하시키기도 하지만, 그 양이 너무 많아도 가스 확산층(GDL)상에서 가스가 실제 화학적 반응을 일으키는 삼상계면(triple phase boundary)으로 확산하는 것을 막기도 하고, 때로는 채널 단면을 막아 가스의 채널 방향으로의 유동을 저해하기도 한다. 이러한 현상을 '플러딩'이라고 하며, 플러딩으로 인해 고분자 전해질형 연료전지의 성능이 저하되므로 고분자 전해질형 연료전지의 효과적인 물 관리를 통한 출력의 개선은 상용화를 위하여 해결해야 할 중

1) 서울대학교 대학원 기계항공공학부

E-mail : gracebk1@snu.ac.kr

Tel : (02)880-7124 Fax : (02)874-2001

2) 서울대학교 기계항공공학부

E-mail : hsk007@plaza.snu.ac.kr

Tel : (02)880-7545 교)3302 Fax : (02)874-2001

3) 서울대학교 기계항공공학부

E-mail : kadmin@snu.ac.kr

Tel : (02)880-1661 Fax : (02)883-0179

요한 과제중의 하나로 인식되고 있다. 이런 이유로 고분자전해질형 연료전지 채널 내부의 물의 생성, 이동 및 제거 특성 대한 연구는 현재까지 여러 기관에서 적극적으로 이루어져 왔다. 이 중 대표적인 것으로 작동하는 연료전지의 공기극을 윈도우 등을 이용하여 가시화하는 방법과<sup>1,2)</sup> 연료전지를 모사하여 작동하지 상태에서의 물방울 관찰하는 ex situ 방법<sup>3-7)</sup> 등의 여러 실험 방법이 진행 되었지만, 아직 2상 유동의 이해 부족으로 신뢰성 있는 모델을 얻어내지 못하는 실정이다.

본 연구는 고분자전해질형 연료전지 내의 물 생성 및 이동 특성에 영향을 미치는 채널의 기하학적 형상과 GDL 특성 등의 설계인자 도출과 이들의 물리적 상관관계를 파악하기 위한 기초연구의 일환으로 수행되었다. 연료전지의 물 발생 과정을 리그 상태의 단순화된 유로 채널 내에서 모사하여 주요 작동 변수의 변화에 따른 물방울의 거동 특성을 관찰하였다.

## 2. 실험 장치 및 방법

### 2.1 실험 장치

Fig. 1은 실제 작동하는 고분자전해질형 연료전지를 모사하기 위한 실험 장치의 개략도이다. GDL은 0.19 mm 두께의 TORAY<sup>®</sup> 카본 페이퍼 (TGP-H-060)를 사용하였다. 물은 유량 조절이 가능한 마이크로 주사기 펌프(Havard Apparatus 'Pump 11')를 사용하여 3.3  $\mu\text{L}/\text{min}$ 의 일정한 유속으로 GDL 하단에서 공급했다. 이는 고분자전해질형 연료전지에서 1.4  $\text{A}/\text{cm}^2$ 의 전류 발생 시 생성되는 물의 양을 계산한 값이다. 이미지 획득을 위해서 SUGITOH 줌 렌즈(TS-93001)와 할로겐 램프 조명을 사용했다. 공기의 가습으로 인해 액적이 물에 미치는 영향을 최소화하여 실험을 수행하기 위하여 상대 습도 2-3 %의 건조 공기를 주입하였으며, 공기 주입부와 기판은 작동 온도 제어가 가능하도록 하였다.

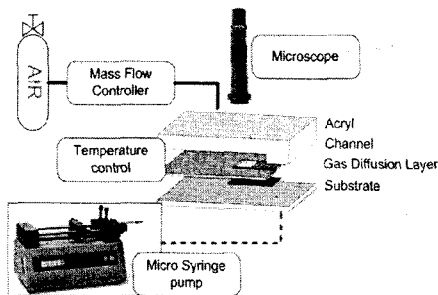


Fig. 1 Schematic representation of experimental system

Fig. 2는 실험을 위한 유로 채널의 모양을 나타낸 것이다. 채널은 깊이 1 mm, 너비 1 mm, 길이 20 mm의 탄소판으로 가공하였으며, 아크릴을 'L' 자 형으로 가공하여 채널의 측면과 상단부에서 모두 가시화가 가능하도록 하였다. GDL은 접착제를 이용하여 기판에 부착하였고, 첫 번째 채널의 GDL 하단의 알루미늄 기판에 있는 지름 1.6 mm의 천공을 통해 GDL로 물을 공급하였으며, 실리콘 펌프와 알루미늄 기판은 모세관 튜브(capillary tube)를 이용하여 연결하였다.

### 2.2. 실험 조건

연료전지의 여러 작동 조건 중, Table 1과 같이 공기의 유량, 작동 온도를 실험을 위한 독립 변수로 설정하여 가시화 실험을 수행하였다.

## 3. 실험 결과 및 분석

### 3.1 액적 분리(Droplet departure)

채널 내에서 성장하기 시작한 물방울은 공기에 의해 유선형 모양으로 성장하다가, 임계점에 이르면 GDL에서 분리되어 빠른 속도로 채널을 따라 흐르게 되는데, 0.1초의 시간 간격으로 촬영한 것을 Fig. 3에 나타내었다. 적용된 시간 간격에서의 촬영으로는 분리된 후의 액적의 모습은 볼 수 없지만, 흰 실선으로 표시된 바와 같이 물방울은 GDL 표면에 미량의 물의 흔적을 남기면서 흐른다.

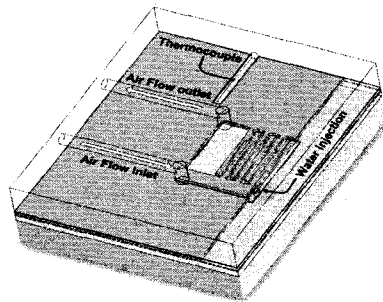


Fig. 2 Flow channel design

Table 1 Experimental Conditions

Temperature	30 °C	50 °C	70 °C
Air velocity	0.5 m/s ~ 4.33 m/s		
Water flow rate	3.3 x 10 <sup>-3</sup> cc/min		
Absolute Pressure	1 bar		

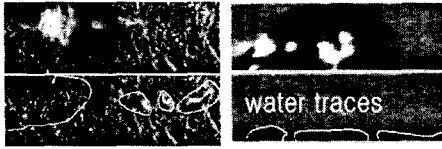


Fig. 3 Images of water droplet departure for  $\Delta t = 0.1$  sec (upper-view and side-view)

Fig. 4는 액적이 GDL 표면에서 분리될 때의 크기를 공기 유속에 따라 나타낸 것이다. 공기의 유속이 클수록 물방울이 GDL에서 분리되는 크기가 작아지는 경향임을 알 수 있다.

액적은 가스 확산층과 이루는 접촉선에서의 표면장력보다 공기에 의한 항력이 커지면 평형이 깨지고 불안정하게 되어 분리되는데, 정접촉각 (static contact angle)과 이 순간의 접촉각 히스테리시스(contact angle hysteresis)는 물방울이 움직이는데 필요한 힘을 결정하는 중요한 변수이다. Fig. 5는 액적 분리 순간의 전진각 (advancing contact angle)과, 후진각(receding contact angle)을 액적 크기에 따라 나타낸 것이다. 후진각의 변화는 크지 않은 데 반하여, 액적의 분리 크기가 클수록 전진각이 커지는 경향이 있음을 볼 수 있다. 또한, Fig. 6에서 접촉각 히스테리시스를 표시하였다. 공기의 유속이 클수록 접촉각 히스테리시스는 작아지는 경향을 알 수 있다.

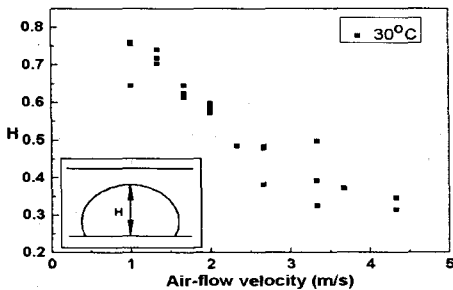


Fig. 4 Dimensionless droplet height vs. air flow velocity

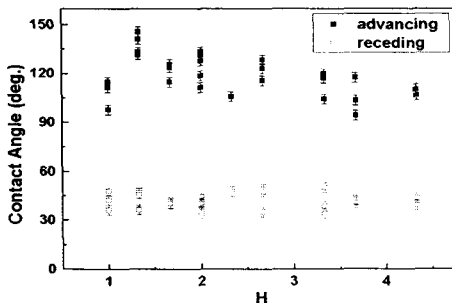


Fig. 5 Advancing and receding contact angles vs. dimensionless departure droplet height

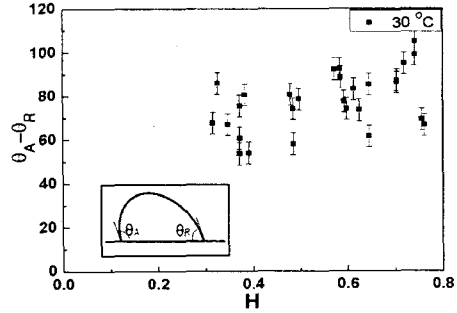


Fig. 6 Contact angle hysteresis vs. dimensionless departure droplet height

### 3.2 슬러그(Slug) 유동

물방울이 성장 과정 도중 유로 채널과 접촉하거나, GDL 표면에서 물방울이 표면장력을 극복하고 분리될 수 있는 충분한 공기 유량이 공급되지 않으면, 물방울은 성장하여 분리되지 못하고 표면을 따라 천천히 흐르는 슬러그 유동 형태를 나타낸다. 슬러그 모양은 초기 생성 시 Fig. 7과 같이 불룩한 앞 부분이 밀려가면서 진행하게 되나, 시간이 지남에 따라 증발하거나 다공성 GDL 쪽으로 재흡수되면서 더 이상 진행하지 못하고 정지하는데, 물방울이 분리 될 때와는 달리 GDL 혹은 채널의 넓은 영역을 덮게 된다.

Fig. 8은 작동 온도와 공기 유속에 따른 슬러그 유동의 진행 거리를 시간에 따라 나타낸 것이다. 물이 동일한 유속으로 계속 공급되고 있으므로, 물의 발생 지점에서부터 슬러그가 연결되어 있고, 그 길이를 나타낸 것이다. 길이 측정은 슬러그가 채널 방향의 진행을 멈추고 높이가 줄어드는 순간까지를 측정하였다. 물 발생 초기에는 공기의 유속이 클수록 물의 진행 속도가 빠른 경향을 나타내지만, 시간이 지날수록 속도가 느려지는 것을 알 수 있었다. 이는 표면적이 넓어지면서 물이 건조에 공기 노출되어 증발되거나 다공성의 GDL에 다시 흡수되어 채널에 남아 있는 액체 상태의 물이 줄어드는 것에 기인하는 것으로 판단되나, 그 정량적인 측정은 본 실험의 범위에 포함되지 않았다.

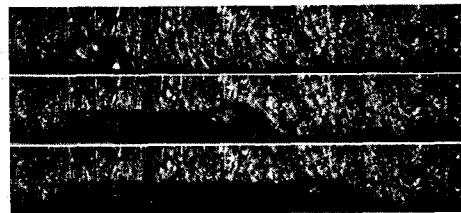


Fig. 7 Water flow attached to the channel with  $\Delta t = 15$  sec and  $V_{air}=3.33$  m/s (upper-view)

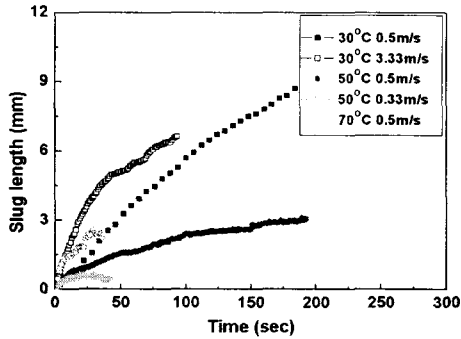


Fig. 8 Slug flow length with air flow rate and temperature

50°C, 70°C의 공기 유량 조건에서의 실험 결과 GDL에서 성장하는 액적은 GDL에서 분리될 만큼 성장하기 전에 다시 크기가 감소하였다. 이는, 온도가 증가하면서, 포화 수증기압의 증가로 인해 액체 상태의 물의 증발이 활발하게 일어났기 때문인데, 실험 도중 아크릴에 응축되는 물을 통해서도 확인할 수 있었다. 70°C, 공기 유속 3.33 m/s 조건에서 물은 GDL 표면에 물방울이 성장한 후에 채널에 붙지 않고 5초 내외로 사라져 슬러그 유동의 형태를 나타내지 않았다.

#### 4. 결론

고분자 전해질형 연료전지의 물 발생 과정을 본 실험을 통해 조사하여 단순화된 채널 내의 물의 거동을 고찰하였으며 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 공기의 유속이 빠를수록 액적이 분리되는 크기는 선형적으로 감소하며, 접촉각 히스테리시스는 작아진다.
- 2) 성장하던 액적에 작용하는 표면장력이 커서 가스 확산층으로부터 분리되지 못할 때에는 유로 채널에 붙어 느리게 진행되는 슬러그 유동을 형성한다.
- 3) 슬러그 발생 후 5초 내외의 진행 초기에는 공기 유속이 증가하면(0.5 m/s → 3.3 m/s) 슬러그의 진행 속도가 약 3배 정도 증가하나, 일정한 유량의 물이 공급될 경우 그 진행 속도는 시간에 따라 점점 감소한다. 또한 온도가 높은 조건에서는 물이 증발하여 액적의 성장도 느려지거나 억제되고, 슬러그 유동의 진행 속도도 감소한다.
- 4) 1 ~ 2 m/s의 일정 공기 유속 조건에서 액적이 분리되어 진행하다가 채널이나, 가스 확산층 표면에 닿아 정지하면, 추가적인 물의 공급이 있을 때까지 벽에 붙어 있다.

#### References

- [1] K. Tüber, D. Pocza, C. Heblong, 2003, "Visualization of water buildup in the cathode of a transparent PEM fuel cell", Journal of Power source, 124, pp. 403-414.
- [2] X.G. Yang, F.Y.Zhang, A.L. Lubawy, C.Y. Wang, 2004, "Visualization of Liquid Water Transport in a PEFC", Electrochemical and Solid-State Letters, 7 (11) A408-A411
- [3] Jonh Borrelli, Thomas Trabold, Sarish G. Kandlikar, Jon Owejan, 2005, "Water Transport Visualization and two-phase pressure drop measurements in a simulated PEMFC cathode minichannel", 3rd International Conference on Microchannels and Minichannels.
- [4] Ken S. Chen, Michael A. Hickner, David R. Noble, 2005, "Simplified models for predicting the onset of liquid water droplet instability at the gas diffusion layer/gas flow channel interface", Int. J. Energy Res., 29, pp. 1113-1132.
- [5] S.Litster, D.Sinton, N. Djilali, 2006, "Ex situ visualization of liquid water transport in PEM fuel cell gas diffusion layers", Journal of Power Sources, 154, pp. 95-105
- [6] Eon Soo Lee, H. Hidrovo, E. Steinbrenner, Fu-Min Wang, Sebastien Vigneron, Kenneth E. Goodson, John K. Eaton, 2005, "Flow structure and frictional characteristics on two-phase flow in microchannels in PEM fuel cells", 2005 ASME Fluids Engineering Divisions Summer Meeting and Exhibition.
- [7] Michael A. Hickner, Ken S. Chen, 2005, "Experimental studies of liquid water droplet growth and instability at the gas diffusion layer/gas flow channel interface", 3rd International Conference on Fuel Cell Science, Engineering and Technology.