

## 연료전지용 고효율 주변장치 (BOP) 설계를 위한 고분자 전해질 연료전지 (PEMFC) 스택 모델링

김중수\*, 최규영\*, 나재형\*, 강현수\*, 이병국\*, 이원용\*\*  
 성균관대학교 정보통신공학부\*, 에너지기술연구원 고분자연료전지연구단\*\*

### Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell (PEMFC) Modeling for High Efficiency Fuel Cell Balance of Plant (BOP)

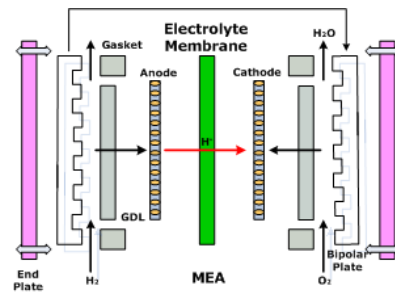
Jong-Soo Kim\*, Gyu-Yeong Choe\*, Jae-Hyeong Na\*, Hyun-Soo Kang\*, Byoung-Kuk Lee\*, Won-Yong Lee\*\*

\*School of Information & Communication Engineering, Sungkyunkwan University,

\*\*Polymer Electrolyte Fuel Cell Research Center, Korea Institute Energy Research (KIER)

**Abstract** - 본 논문에서는, 연료전지 시스템의 기계적 주변장치 (MBOP)와 전기적 주변장치 (EBOP)의 최적 설계를 위해서 PEMFC 스택을 전기화학반응을 기초로 모델링한다. 모델링을 위해 기본적인 PEMFC의 구조와 동작 원리를 설명한다. 연료전지의 이론적 최고 전압인 평형전위를 깃스 자유에너지와 네른스트 방정식으로 유도한다. 전류 밀도에 따른 전압 손실인 활성화, 저항, 농도 분극현상을 표현하기 위해서 수식을 유도한다. 수소가 이온화되지 못하고 산소극으로 넘어가서 발생하는 연료손실 및 내부전류와 지속적인 정역반응인 교환전류도 모델링된다. 평형전압에서 각 분극을 뺀 실제 운전 전압을 시뮬레이션하고, 유량과 압력에 따른 출력 특성을 시뮬레이션 한다. 부하변동 시 출력특성을 시뮬레이터와 실험결과로 비교한다.

(Bipolar Plate)이라고 한다. 분리판 내부의 유로는 실제 반응물이 이동하고 생성물이 제거되는 곳으로 연료전지 성능에 중요한 역할을 한다 [5].



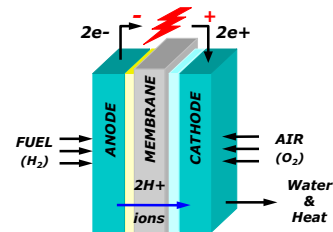
<그림 1> PEMFC의 동작원리

## 1. 서 론

연료전지는 화석연료의 대체와 온실가스 저감 등의 문제점들을 해결할 수 있는 미래 에너지원으로 각광받고 있다 [1]. 연료전지 시스템에서 전력변환장치(PCS)는 직류 출력을 승압하고 상용 교류 전원으로 변환하는데 필수적이다. PCS 최적 설계를 위해서는 입력전원의 정확한 출력 동특성을 이해해야 한다. 즉, 입력전원인 연료전지와 기존 DC 전압원의 차이점을 고려하지 않고 PCS를 설계하면 고성능/고효율 출력특성을 얻을 수 없다. 때문에 다양한 방법으로 연료전지 스택을 모델링하고 있다. 기존에 연구되었던 모델링 예를 살펴보면 연료전지의 출력특성을 수동소자인 R, L, C를 이용한 전기적 임피던스 모델링이 수행되었다 [2],[3]. BJT, 다이오드, L, C 소자를 Pspice 기반으로 전기적 회로 모델링한 사례가 있다 [4]. 또한 매우 복잡한 전기화학 및 기계적 방정식을 모델링하여 컴퓨터 유동해석(CFD)으로 연료전지 스택 내외부의 특성을 모델링한 예가 있다 [7].

### 2.1.2 PEMFC의 동작원리

그림 2는 PEMFC의 동작 원리를 보여준다. 연료는 가습된 상태로 메니폴트를 지나 분리판의 채널로 공급된다. 가습을 하는 이유는, 수소가 이온이 수화된 H<sub>3</sub>O<sup>+</sup>의 형태로 전해질 막을 통과할 때 이온전도도가 높기 때문이다 [5].



<그림 2> PEMFC의 동작원리

본 논문에서는 다양한 연료전지 중 저온 구동이 가능하고 휴대용 및 자동차용 연료전지로 각광받고 있는 PEMFC를 회로나 전기적 수동소자를 이용하지 않고 전기화학 방정식으로 모델링한다. 대부분의 문헌에는 복잡한 전기화학 방정식을 기본으로 하고 있고, 그것은 대부분 연료전지 스택 자체를 설계하기 위해서 유도된다. 그러므로 본 연구에서는 전기화학 방정식의 기본내용을 이해하기 쉽도록 요약한다. 네른스트 모델, 세 가지 분극현상, 연료손실 및 내부전류, 그리고 교환전류와 제환전류를 수식적으로 모델링하고 시뮬레이션 하였으며 시뮬레이터를 제작하여 실험결과를 비교하였다. 이 결과는 PCS의 입력전원을 DC 전압원 대신 PEMFC의 출력특성으로 대체하여 PCS 최적설계에 도움을 줄 수 있다.

## 2. 본 론

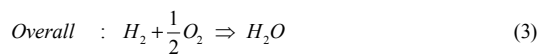
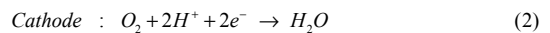
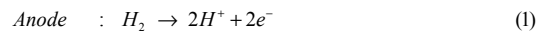
### 2.1 PEMFC의 구조 및 동작원리

PEMFC의 수학적 모델링을 전개하기 위해 PEMFC의 내부구조와 동작원리 이해가 필요하며 다음과 같다.

#### 2.1.1 PEMFC의 물리적 구조

그림 1은 일반적인 PEMFC 단위 셀의 구조를 보여준다. 중앙에 고분자 전해질 막(Membrane)이 있고, 전해질 양쪽에 연료극(Anode)과 공기극(Cathode)이 위치한다. 일반적으로 일체형으로 제작되고 막-전극 접합체(Membrane Electrolyte Assembly, MEA)라고 한다. 전해질로는 대부분 나피온(Nafion)이 사용되고, 이것은 수소이온에 대해서만 전도도를 가진다. 전극은 얇은 지지체와 탄소천이나 탄소종이 위에 촉매를 뿌려서 만들어 진다. 반응면적을 최대화하기 위해서 전극, 촉매, 탄소의 삼상계면을 형성하도록 제작한다. 전극 양쪽으로는 가스확산층(Gas Diffusion Layer, GDL)이 존재하고, 이것은 연료의 공급을 고르게 하기 위해 사용된다. 연료 밀봉을 위해 개스킷이 삽입되며, 일반적으로 고무를 사용한다. 반응물을 공급하기 위한 채널역할, 반응 생성물인 물 제거 그리고 생성된 전자를 외부로 공급 해주는 집전체가 필요한데 이것을 분리판

연료극에서의 반응은 산화반응이다. 유입된 수소는 H<sup>+</sup>이온과 전자(e<sup>-</sup>)로 분리된다. 이온전도성을 가진 전해질 막을 통해서 이온은 산소극으로 이동하고, 전자는 집전판을 통해 외부 회로에 공급된다. 산소극에서의 반응은 환원반응이다. 산화제로 공급되는 산소와 수소가 이온화 되어 수소이온 및 전자의 반응물로 물이 생성된다. 각 극에서 발생하는 화학 반응식은 식 (1)-(3)과 같다.



### 2.2 PEMFC 모델링

연료전지 출력을 결정하는 화학에너지는 깃스 자유에너지로 설명된다. 반응물의 반응이 가역반응이라고 할 때 이론적 최대 전압(Open circuit voltage)은 1.229V 이다. 그러나 실제 연료전지 출력은 이론적 최대 전압보다 낮으며 이것을 결정하는 여러 요소가 모델링 되어야 한다.

### 2.2.1 네른스트 모델 (Nernst model)

네른스트 모델은 19세가 말 Walter Nernst의 열역학적 해석으로 수립된 것으로, 비표준 상태에서 이론적인 전극 전위를 계산할 수 있는 식이다. 이것은 연료전지 내부의 전기화학 반응으로부터 유도된다. 식(4)는 네른스트 방정식을 나타낸다.

$$E = E^o + \frac{RT}{2F} \ln \left( \frac{P_{H_2} P_{O_2}^{\frac{1}{2}}}{P_{H_2O}} \right) \quad (4)$$

여기서,  $E^o$ 는 평형전극전위,  $R$ 은 가스상수(8.3144 J/mol K),  $T$ 는 절대온도(K),  $F$ 는 패러데이 상수(96,495 C/mol),  $P$ 는 분압을 나타낸다.

### 2.2.2 분극현상 및 손실

실제 연료전지의 반응은 비가역 반응이며 이 비가역 손실에 의해 연료전지 스택의 출력전압은 평형전위보다 항상 낮게 나온다. 이 손실을 분극(Polarization)이라 한다. 분극현상은 수소 기체가 전극에 달라붙어 전자의 흐름을 방해해서 전압이 떨어지는 손실로 이해할 수 있으며 크게 세 가지로 구분할 수 있다.

첫째로, 활성화 분극(Activation polarization)이다. 이것은 전극 촉매 반응과 연관이 있으며, 전극표면에서 발생하는 반응의 속도차로 인해 발생한다. 즉, 수소나 산소와 전극과의 반응이 너무 느릴 경우 발생하게 된다. 활성화 분극은 타펠 방정식의 일반적인 형태로 표현이 가능하다 [5]. 이 영역은 저온형 연료전지의 경우 가장 큰 전압 손실이 발생되며 급격한 부의 기울기를 갖는다. 식 (5)는 타펠 방정식을 나타낸다.

$$\eta_{act} = \frac{RT}{\alpha nF} \ln \frac{i}{i_0} \quad (5)$$

여기서,  $\alpha$ 는 활동도,  $n$ 은 반응에 참여한 전자의 개수,  $i_0$ 는 교환전류밀도,  $i$ 는 전류밀도를 나타낸다. 타펠 기울기를 빠른 반응으로 만들기 위해서는 분모항이 커져야 한다. 즉, 좋은 촉매를 사용하여 활동도를 높이거나 다공성전극을 사용하고 전극의 표면적을 넓혀 교환전류밀도를 크게 해야 한다.

둘째로, 저항 분극(Ohmic polarization)이다. 이것은 전해질 저항, 전극 저항, 도선의 고유저항 및 연결부의 접촉저항에서 발생하는 전압강하로 일반적인 저항에서의 전압강하이다. 이 영역은 거의 일정한 부의 기울기를 가지며, 실질적인 연료전지의 운전영역이다. 일반적으로 정격운전 전압은 0.6~0.7V 정도이다. 식 (6)은 저항 분극을 나타낸다.

$$\eta_{ohm} = iR \quad (6)$$

셋째로, 농도 분극(Concentration polarization)이다. 이것은 전극과 전해질 계면에 전해질이 부족하여 반응물의 농도 기울기가 발생하는 것에 의한 전압손실이다. 이 영역은 매우 급격한 전압 강하가 발생되며, 실제로 사용되지 않는 영역이다. 식 (7)는 농도분극을 나타낸다.

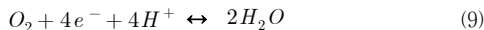
$$\eta_{com} = \frac{RT}{nF} \ln \left( 1 - \frac{i}{i_L} \right) \quad (7)$$

마지막으로, 연료손실(Fuel crossover)과 내부전류(Internal current)로 인한 손실이 발생된다. 이것은 이온 전도성을 띤 전해질이라도 미소 연료량이 이온화 되지 못하고 산소극으로 넘어가 직접 산소와 반응하는 현상을 말하며, 외부로 유출되는 전류가 없어도 셀 내부적으로 발생된다. 내부전류는 식 (8)과 같이 나타낸다.

$$i_n = e \frac{1.04 - V}{0.06} - i \quad (8)$$

### 2.2.3 교환전류밀도 및 제한전류

부하가 인가되지 않은 경우, 즉 전류밀도가 0일 때 전극에서의 반응은 발생하지 않는다. 그러나 실제 연료전지의 전극반응은 항상 발생한다. 정반응과 역반응의 비율이 같기 때문에 실제로 반응이 발생하지 않는 것처럼 보인다 [6]. 이러한 현상은 식 (9)와 같다.



전극과 전해질에서의 지속적인 정반응과 역반응 전류를 교환전류(Exchange current)라고 한다. 교환전류밀도는 촉매, 촉매면적, 전극면적, 반응물의 분압, 온도 및 활성화 에너지 등에 의해 좌우되며 또한 비례한다. 교환전류밀도가 크면 활성화 분극이 줄어든다. 이것은 연료전지

의 효율에 매우 중요한 파라미터 중 하나이다. 교환전류밀도는 식 (10)과 같이 표현된다.

$$I_o = I_o^{ref} a_c L_c \left( \frac{P_r}{P_r^{ref}} \right)^r \exp \left[ -\frac{E_c}{RT} \left( 1 - \frac{T}{T_{ref}} \right) \right] \quad (10)$$

여기서,  $I_o^{ref}$ 는 실제 촉매 도포면적에서의 기준 교환전류밀도(@STP),  $a_c$ 는 중에 따른 촉매면적( $cm^2/mg$ ),  $L_c$ 는 촉매도포면적 ( $mg/cm^2$ ), 반응물의 분압, 그리고  $r$ 은 반응물에 따른 반응차수이다.

제한전류밀도(Limit current density)는 픽크(Fick) 확산법칙과 이상기체 방정식의 관계를 이용하여 구할 수 있다. 식 (11)은 제한전류밀도를 나타낸다.

$$i_L = \frac{nFD}{RT\delta} P \quad (11)$$

여기서,  $D$ 는 확산계수 ( $10^{-2} cm^2/s$ ),  $\delta$ 는 확산층의 두께이다.

### 2.2.4 운전전압

PEMFC 스택의 운전전압은 평형전위에서 각 분극으로 인한 손실을 뺀 전압이다. 또한 유량 변화에 따른 압력도 PEMFC의 출력 특성을 알기 위하여 반드시 고려되어야 한다. 압력은 활성화분극과 농도분극에 영향을 주고, 출력 V-I 특성 역시 압력의 함수이기 때문이다. 연료전지의 운전전압은 식 (12)와 같이 표현된다.

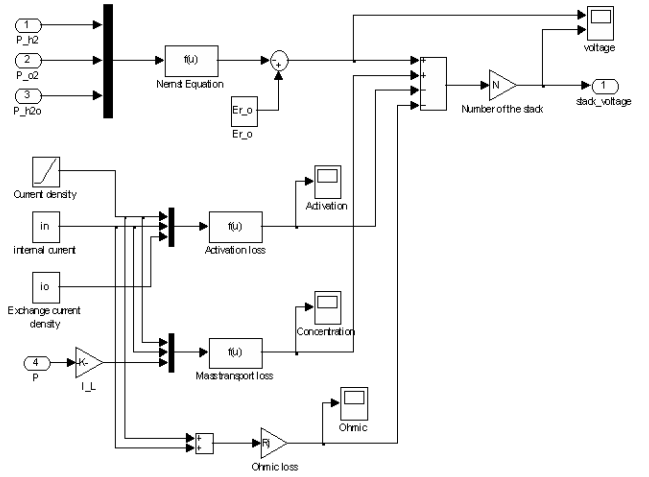
$$V = E - (i + i_n)r - A \ln \left( \frac{i + i_n}{I_o^{ref} a_c L_c \left( \frac{P_r}{P_r^{ref}} \right)^r \exp \left[ -\frac{E_c}{RT} \left( 1 - \frac{T}{T_{ref}} \right) \right]} \right) + B \ln \left( 1 - \frac{i + i_n}{i_L * P} \right) \quad (12)$$

여기서, 타펠기울기  $A = \frac{RT}{\alpha nF}$ ,  $B = \frac{RT}{nF}$

## 2.3 시뮬레이션 및 실험

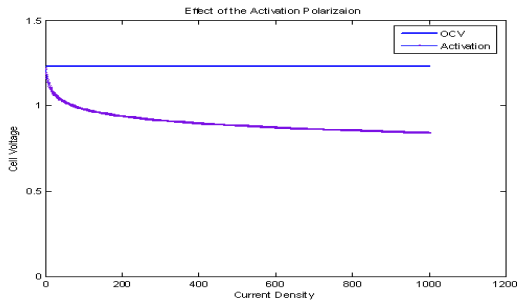
### 2.3.1 모델 시뮬레이션

지금까지의 화학반응을 수식으로 모델링한 결과를 바탕으로 Matlab/Simulink로 시뮬레이션 한다. 그림 3은 시뮬레이션 블록 다이어그램을 나타낸다.



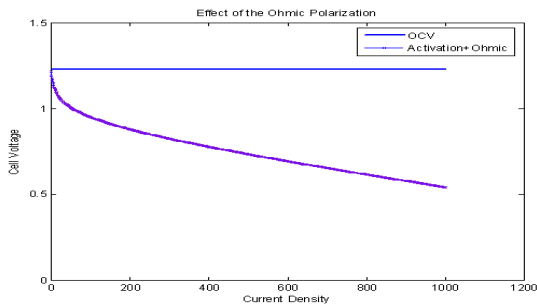
<그림 3> PEMFC 시뮬레이션 블록 다이어그램

이론적 한계전압인 평형전위와 활성화 분극에 의한 전압은 그림 4에 나타난다. 과정에서 보듯이 활성화 분극은 부하의 조건에 관계없이 항상 영향을 받는다. 또한 경부하 조건에서 전류밀도 변화에 대한 전압 강하가 크기 때문에 부하의 운전 패단을 파악하고 PCS를 설계하는 것이 바람직하다.



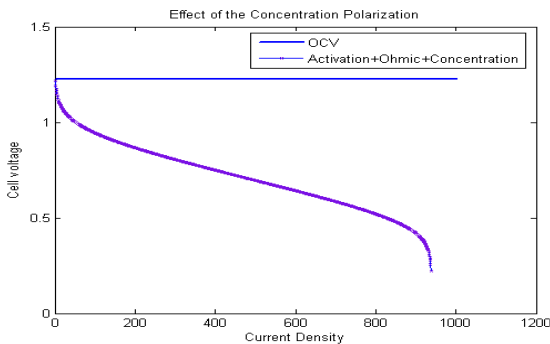
<그림 4> 활성화 분극에 의한 전압손실

그림 5는 저항 분극에 의한 전압강하를 보여준다. 실제 운전 영역이므로, PEMFC 제작 시 전해질 및 집전판, 접촉저항을 줄이는 것이 연료전지 시스템 전체 효율을 증가시킬 수 있다.



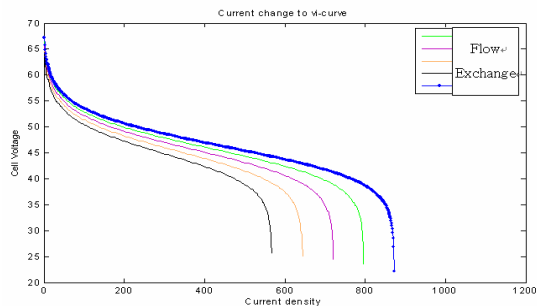
<그림 5> 저항 분극에 의한 전압손실

그림 6은 농도분극을 고려한 전체 출력전압을 나타낸다. PCS가 이 영역까지 운전을 하게 되면 PEMFC 스택에 악영향을 미치므로, PCS의 입력전류 및 연료전지 출력전류에 대한 제어 및 모니터링이 필요하다.



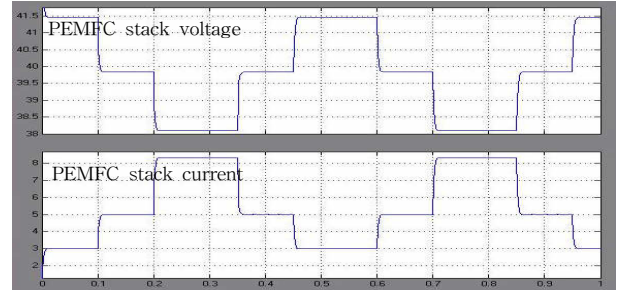
<그림 6> 농도 분극에 의한 전압손실

그림 7은 연료의 유량변화에 따른 V-I 특성곡선의 변화를 보여준다. 유량에 비례하여 제한전류와 교환전류밀도가 변하기 때문에 전체적인 V-I 특성곡선이 변하게 된다. 때문에 유량제어는 매우 중요하며, 실제 시스템에서는 MFC(mass flow controller)를 사용하여 유량을 제어한다. 그림 7에서 보여주는 것처럼, 시뮬레이션 모델은 연료전지의 특성을 나타내고 이것은 연료전지의 출력 특성을 보여주는 데 사용할 수 있다.



<그림 7> 유량 변화에 따른 V-I 특성곡선

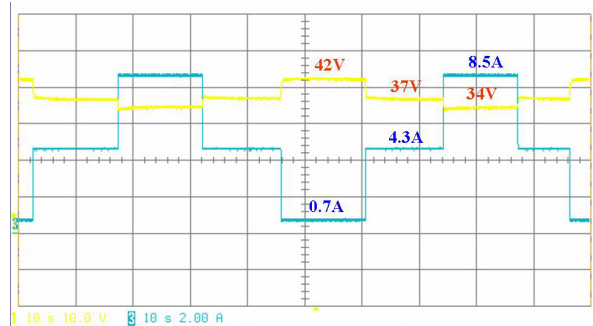
그림 8은 부하 변동시의 출력변화를 보여준다.



<그림 8> 부하 변동 시 출력 V-I 특성곡선

### 2.3.2 실험

시뮬레이터 타당성 검증을 위해 부하 변동에 따른 출력 전압 전류 변화를 Ballard Nexa® 1.2kW PEMFC로 실험하였다. 부하는 저항부하를 사용하였으며, 0.1A, 4A, 8A 스텝으로 변경하였다. 그림 9는 출력 전압 및 전류 파형을 나타내며 실제 연료전지(Ballard Nexa® 1.2kW PEMFC)의 출력과 동일함을 파형을 통해 확인할 수 있다.



<그림 9> 부하 변동 시 출력 전압 전류

## 3. 결 론

PCS 및 주변장치의 최적화 설계를 위해서는 전압 및 부하에 대한 정확한 이해는 필수적이다. 신재생 에너지원은 정전압원이 아닌 동특성을 갖는 비선형 전압원이 대부분이다. 따라서 연료전지와 같은 전기화학반응으로 발생하는 전원의 특성을 이해하기는 쉽지 않다. 본 논문에서는 EBOP 및 MBOP 최적화 설계를 위해서 복잡한 연료전지의 출력발생 원리를 단계적으로 정리하였으며 연료전지용 PCS를 최적 설계를 위한 입력조건으로 활용할 수 있다.

### [참 고 문 헌]

- [1] Sampath Yerramalla, Asad Davari, Ali Feliachi, Tamal Biswas., "Modeling and simulation of the dynamic behavior of a polymer electrolyte membrane fuel cell", *J. of power sources*, 124, pp. 104-113, 2003
- [2] Woojin Choi, Jo.W.Howze, Prasad Enjeti., "Development of an equivalent circuit model of a fuel cell to evaluate the effects of inverter ripple current", *J. of power sources*, 158, pp. 1324-1332, 2006
- [3] M.J.Khan, M.T.Iqbal, "Modeling and analysis of electro-chemical, thermal, and reactant flow dynamics for a PEM fuel cell system", *Fuel cells 05*, Volume 5, Issue 4, pp. 463-475, 2005
- [4] 이수호, 이현우, 권순걸, "연료전지 전원 시스템의 설계 및 분석을 위한 PEMFC의 회로 모델", 전력전자학술대회 논문집, pp. 197-199, 2006.6.22-6.24
- [5] 차일남, 박준철, 조은애, 임태훈, 손지원, 김민수, 김관영, 김세훈, 임태원, 홍성안., "연료전지 자동차", 도서출판 아진
- [6] James Larminie, Andrew Diks, "Fuel cell system explained, 2nd ed.", JOHN WILEY & SONS, LTD
- [7] D.Natarajan, T.V.Nguyen, "Three-dimensional effects of liquid water flooding in the cathode of a PEM fuel cell", *J. of power sources*, 115, pp. 66-80, 2003