

차량용 고분자전해질 연료전지의 냉시동 특성

고 재준¹⁾, 권 순길²⁾, 김 영범³⁾, 이 종현⁴⁾

Characteristics of cold startup in automotive PEMFC

Jaejun Ko, Soonkill Kwon, Youngbum Kum, Jonghyun Lee

Key words : Fuel cell(연료전지), PEM(고분자전해질막), Cold startup(냉시동), Automotive(차량)

Abstract : The startup behaviour of PEM fuel cells at subfreeze zero is one of the most challenging tasks to be solved before PEM fuel cell vehicle is commercialized. Automotive companies are trying to increase cold startup capability of fuel cell. In this study, we found out the design factor of the stack to increase cold startup capability using 4kW stack and then cold startup test was performed at the various shutdown condition and the various current.

In order to test the cold startup possibility and capability in vehicle, we installed 80kW stack in the vehicle and this 80kW fuel cell vehicle was housed in an environmental chamber to investigate the characteristics of cold startup and driving. We found that it is possible for fuel cell vehicle with 80kW stack to self-heated cold startup and drive at -15°C.

1. 서 론

고분자 전해질 연료전지(Polymer electrolyte membrane fuel cell, PEMFC)는 수소와 산소의 전기 화학적 반응을 통해 물과 열을 발생시키면서 전기를 발생시키는 장치로, 다른 형태의 연료전지에 비해 효율이 높고, 전류밀도 및 출력 밀도가 크며 시동시간이 짧은 동시에 고체 전해질을 쓰기 때문에 전해질 조절이 필요 없는 장점을 가지고 있다. 또 반응 생성물이 순수 물이기 때문에 친환경적인 동력원으로 현재 전세계 자동차 업계에서 활발한 연구가 진행 중이다.

PEMFC는 전해질로 주로 Perfluorosulfonic acid계 고체 고분자를 사용하는데, 이 전해질 막의 이온 전도성은 전해질 막의 가수화 정도가 클수록 증가하게 된다. 따라서 연료전지 운전시 전해질막 가수화를 위해 재순환 시스템이나 가습기를 도입하게 된다.

하지만 이렇게 가습을 통해 공급된 물이나 반응에 의해 생성된 물은 연료전지의 온도가 0°C이 하로 떨어지게 되면 얼게 되는데, 물이 얼음으로 변할 때의 부피팽창은 Pore 구조를 갖는 막전극 접합체에 손상을 줄 수 있고,¹⁾ 냉시동시에는 Iceblocking을 초래하여 공급가스가 촉매층내 반응사이트에 도달하는 것을 방해할 수 있다. 이를 최소화하여 안정적이고 빠른 냉시동 성능을 구현하기 위한 방법 및 설계 인자를 찾는 많은 연구들이 진행되고 있지만 많은 부분이 소면적 Single

cell 범위에서 진행되어지고 있다.^{2) 3)}

본 연구에서는 시스템 및 제어를 간소화 하기 위해 냉각부동액의 단일루프 적용성 검토 후 기밀불량으로 인한 발생 문제점을 고온 경화형 가스켓을 적용함으로 해결하였고, 4kW급 20셀 스택을 제작하여 다양한 조건에서의 연료전지 냉시동 특성 분석 및 냉시동 성능을 향상시키기 위한 설계 변경을 실시하여 -15°C에서 안정적이고 기존 사양대비 향상된 냉시동 성능을 확보하였으며, 최종적으로 80kW급 스택을 제작 후 실제 스포티지 연료전지 차량에 탑재하여 -15°C에서의 냉시동성 및 저온 주행성을 평가함으로 당사 연료전지 차량이 영하의 온도에서도 안정적으로 시동 및 주행 가능함을 확인하였다.

1) 현대자동차

E-mail : jaejunko@hyundai-motor.com
Tel : (031)899-3198 Fax : (031)899-3331

2) 현대자동차

E-mail : soonkill@hyundai-motor.com
Tel : (031)899-3232 Fax : (031)899-3331

3) 현대자동차

E-mail : ybkum@hyundai-motor.com
Tel : (031)899-3198 Fax : (031)899-3331

4) 현대자동차

E-mail : jhlee1@hyundai-motor.com
Tel : (031)899-3206 Fax : (031)899-3331

2. 실험장치 및 조건

2.1 소용량 연료전지 스택 제작

연료전지는 공급가스가 흐를 수 있는 서펜타인 유로가 형성된 분리판 사이에 상용 막-전극 접합체(MEA, Membrane electrode assembly)와 그 양면에 Felt type의 가스확산층(GDL, Gas diffusion layer)을 둔 후 일정압력으로 체결하여 제작하였다. 특히, 몇몇 분리판 내부에는 Thermocouple용 홀(hole)을 가공하여 분리판내 온도 분포를 알 수 있도록 하였다. 부동액 기밀성 평가를 위해 3셀 스택을, 냉시동성 평가를 위해 20셀(4kW급) 스택을 제작하였다. 20셀 스택은 1, 6, 11, 16, 21번에 온도 측정 가능 분리판을 삽입하였고, 가스 및 냉각수 입출구가 연료전지 운전장치(Test Station)에 장착된 상태에서 환경챔버(Environmental chamber)안에 설치되었다.

2.2 스택 운전 및 평가

스택 운전을 위해 반응가스로 수소와 공기가 사용되었고, 냉각수는 당사에서 개발 중인 냉각부동액을 적용하였다. 냉시동시 Anode, Cathode 모두 무가습 반응가스를 공급하였고, 스택 내부로 들어가는 반응가스의 온도를 환경챔버내의 온도와 같게 하기 위해, 가스 입구 라인을 충분히 길게 함으로 온도를 동일하게 유지해 주었다. 냉시동시에는 부동액을 충전한 상태로 평가하여 차량상태와 동일하게 구현하였고, 냉각수를 순환시키지 않으므로 열손실을 최대한 억제하였다.

냉동시에는 선행테스트를 통해 스택의 전부분이 환경챔버내 온도와 같아지도록 Soaking시간을 설정하였다.

2.3 80kW급 연료전지 스택 제작

냉시동 성능에 대한 차량 적용성 평가를 위해 80kW급 스택이 제작되었다. 20셀과 동일한 단품사양(MEA, GDL, 분리판, 앤드플레이트, 체결밴드)을 적용하여 총 424셀을 적층하였고, 단열성을 증가시키기 위해 당사에서 개발 중인 단열재를 적용하여 인클로저와 스택 사이에 적용하였다. Fig 1은 80kW급 연료전지 스택의 구성도를 나타낸 그림이다.

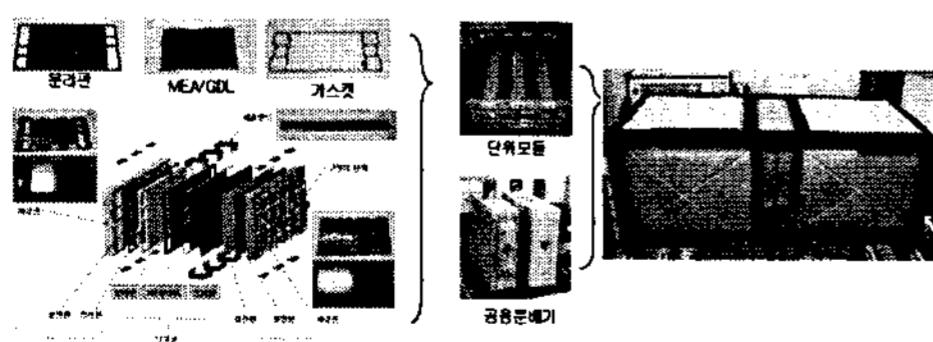


Fig. 1 80kW 연료전지 스택 구성

2.4 연료전지 차량 및 평가

제작된 80kW급 스택을 연료전지 차량에 장착한 후, 상온 시동 평가, 주행성 평가 등을 우선 실시하였다. 이 냉시동 차량의 냉각라인에 -20°C 이하에서도 얼지 않는 냉각 부동액을 적용하였고, 선행평가를 통해 시스템이 간소화된 냉각라

인 단일 루프 시스템을 적용하였다. 냉시동성 및 저온 주행성 평가시 연료전지 차량을 환경챔버에 넣고 온도 설정 후 22시간 이상 Soaking시간을 두었다. 이 22시간의 Soaking 시간은 예비 평가를 통해 단열재가 적용된 당시 80kW 스택의 정중앙 부분이 외기 온도와 같아지는 온도로 정의하였다. 즉, 스택 전체 온도가 외기 온도와 같아질 때의 시간으로 선정하였다. Fig 2의 왼쪽 그림은 환경챔버내에서 냉시동성 평가 중인 연료전지 차량을 나타낸 사진이고, 오른쪽 그림은 Dyno-환경챔버내에서 저온 주행성 평가 중인 연료전지 차량을 나타낸 사진이다.



Fig. 2 연료전지 자동차 냉시동 평가

3. 실험결과

3.1 냉각 부동액 및 시스템 구성

연료전지의 냉시동 성능 확보를 위해서는 비열이 높고 전기전도도가 낮아 냉각수로 사용되고 있는 DI-water를 영하에서도 얼지 않는 부동액으로 바꾸어 주어야 한다. 부동액 적용을 위해 연료전지 시스템은 두가지 타입으로 설계 될 수 있는데, 하나는 이중루프 형태로 중간 열교환기를 설치하여 냉각부동액이 스택과 직접적으로 접촉하지 않는 시스템이고, 다른 하나는 열교환기 없이 연료전지 스택을 부동액으로 직접 냉각시키는 것이다. 후자의 경우 시스템이 간단하고, 냉각효율이 높은 장점이 있지만 스택의 기밀성이 확보되지 않는다면 부동액이 가스 채널쪽으로 침투하여 촉매층의 열화와 GDL로의 흡착에 따른 물질이동저항을 증가시킬 수 있다. 이러한 문제를 해결하기 위해 당사에서는 부동액과 직접 접촉하는 단품들의 적합성을 평가하여 가스켓이 취약함을 알았고, 이를 극복하기 위해 고온 경화형 가스켓을 적용하여 1,000시간 연속 운전시에도 성능감소가 나타나지 않음을 확인하였다.

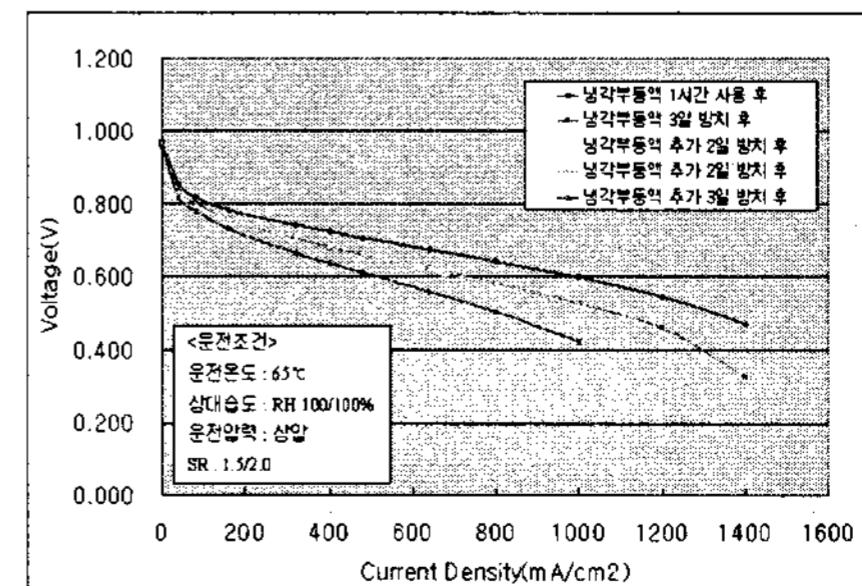


Fig. 3 부동액에 충전시간에 따른 I-V curve

Fig. 3은 상온경화형 가스켓을 적용한 스택의 냉각부동액 적용성 결과를 나타낸 것으로, 장시간 사용시 부동액 침투에 의해 성능이 감소됨을 알 수 있다.

3.2 연료전지 스택 냉시동 특성

Fig. 4는 외기온도 -10°C 에서 스택 냉시동 특성을 운전 시간에 따른 셀전압 및 스택온도로 나타낸 것이다. 이 때 측정된 스택 온도는 스택의 정중앙셀의 중앙부 온도이고, 반응가스로 Anode에 무가습 수소를 Cathode에 무가습 공기를 공급하였다. 전류가 부과 될수록 자체 발열에 의해 스택의 온도가 상승하고, 전압도 같이 상승함을 알 수 있다. 하지만 외각셀인 1번과 20번의 경우 타셀들에 비해 낮은 전압을 나타내는데, 이는 중앙셀의 경우에는 자체 발열과 옆셀들의 발열에 의해 온도가 빠르게 올라가지만 외각셀의 경우 각각 바깥쪽 부분이 전기 접전을 위한 커런트 컬렉터와 구조 변형없는 스택 체결을 위해 Mass가 큰 엔드 플레이트가 사용됨에 따라 그에 따른 열 손실이 발생했기 때문이다.

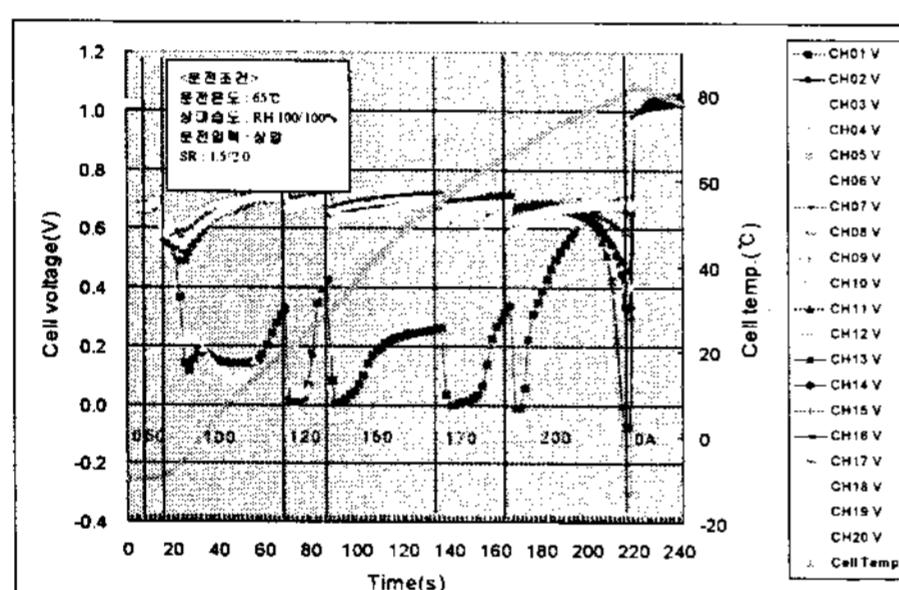


Fig. 4 냉시동시 연료전지 스택 전압 거동

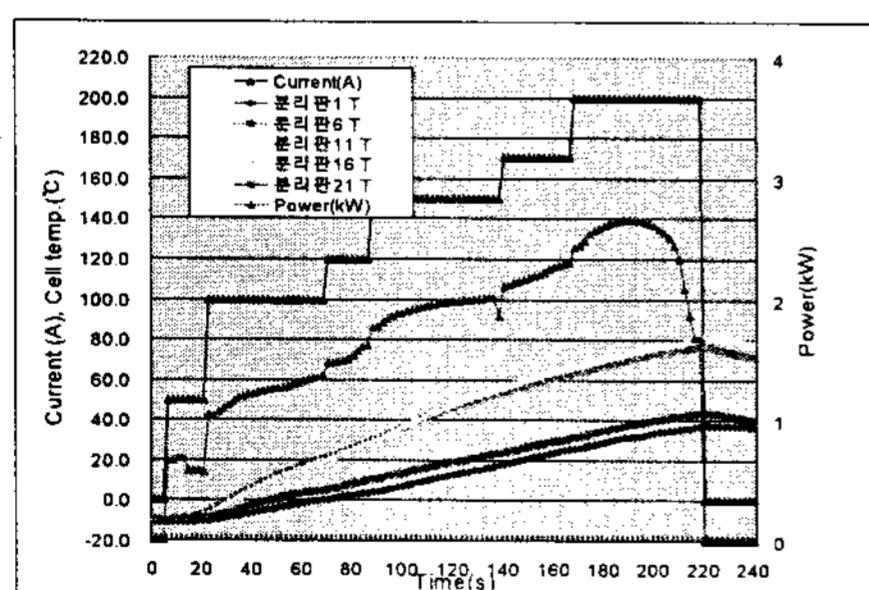


Fig. 5 냉시동시 스택 내 온도 분포

Fig. 5는 스택 내 온도분포를 각 분리판의 중앙부분에서 온도를 측정을 통해 나타낸 결과이다. 외각 셀(1T, 21T) 온도가 0°C 가 되었을 때를 기준으로 중앙부분 셀과 외각부분 셀의 온도 편차가 20°C 이상 벌어짐을 알 수 있다.

빠르고 안정적인 냉시동 성능 확보를 위해선 아래 1)식에서와 같이 가능한 많은 전류를 낮은 전압에서 뽑아야 하는데, 역전압을 발생시키지 않는 상태에서 안정적으로 많은 전류량을 뽑기

위해서는 중앙부 셀과 외각셀의 성능편차를 가능한 줄일 수 있는 기술의 적용이 필요하다.

$$Q = n \times I \times (1.25 - V) \quad (1)$$

이 때 Q는 발생 열량(W), n은 셀수, I는 전류(A), V는 스택의 평균전압(V)을 나타낸다.

3.3 체결기구/커런트 컬렉터 구조 및 단열성분석

연료전지의 냉시동성 확보를 위해선 균형적인 셀 전압 거동이 확보되어야 하고, 이를 위해서는 외각셀 부분의 단열이 매우 중요하다. 하지만 외각셀 분리판의 경우 생성된 전자를 전달하기 위해 Mass가 매우 큰 커런트 컬렉터 및 체결기구와 접합하고 있어 발생된 열이 손실될 수밖에 없다. 하지만 냉시동 성능을 개선하기 위해 구조적으로 안정적이면서 열전달 효과를 줄이기 위해 분리판과 접합하고 있는 부분에 Air pocket 가공을 통해 이를 극복하고자 하였다. 설계 변경 후, Fig 6의 구조분석과 열전도 분석에서 나타난 것처럼 열전달 효과는 1/4로 줄었고, 구조적으로도 변화가 적은 것으로 나타났다.

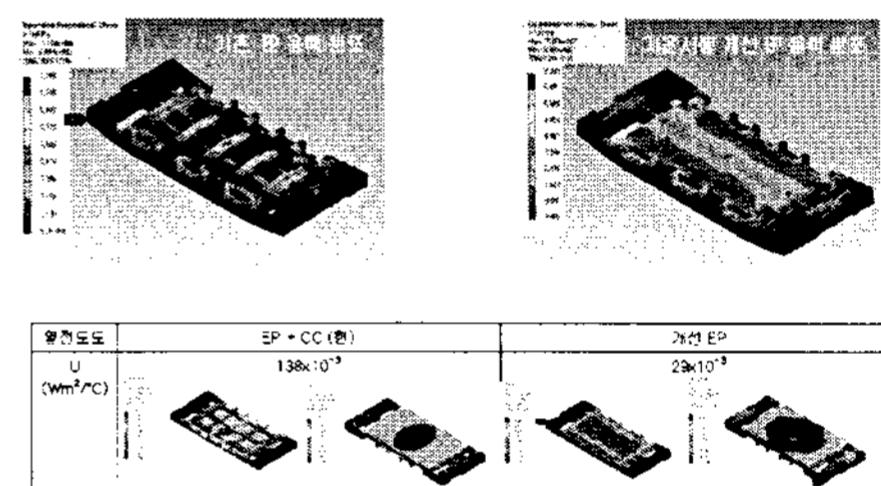


Fig. 6 체결기구/커런트 컬렉터 구조 및 열전도 분석 결과

3.4 체결기구에 따른 냉시동 특성

Fig. 7은 외각셀 단열성 향상을 위해 개발된 체결기구를 적용한 스택과 기존 사양의 체결기구를 적용한 연료전지 스택의 냉시동 특성을 나타낸 그래프이다.

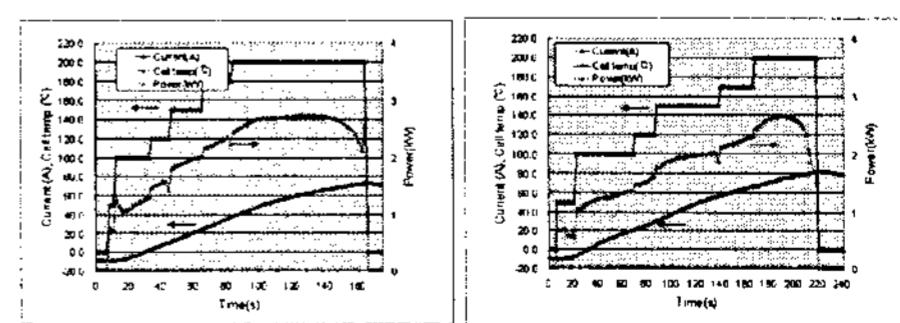


Fig. 7 체결기구에 따른 냉시동 특성

두 스택 모두 -10°C 에서 시동을 실시하였고, 역전압이 걸리지 않는 조건하에서 전류량을 200A까지 최대한 뽑아 가능한 빨리 Heatup이 되게 하였다. 비교 결과 외각셀의 단열성 증가로 빠르게 전류량을 증가시킬 수 있고, 이에 Ratedpower

의 50%인 2kW에 도달시간이 기존 120초에서 64초로 약2배 줄어듬을 알 수 있다. 셀간 온도 편차 분석 결과 기존 사양의 경우 2kW에서 약 32°C가 났고, 개발사양의 경우 15°C로 편차가 많이 줄어 들었음을 알 수 있다.

3.5 S/D별 연료전지 냉시동 특성

연료전지의 냉시동에 있어 Shutdown조건은 매우 중요하다. 즉 냉동전 셀내의 물은 반응가스의 Iceblocking을 형성할 뿐만 아니라 Heatup을 어렵게하는 요소로 작용될 수 있다. 이에 따라 적절한 무가습 퍼지 절차가 필요하게 된다. Table 1은 Shutdown 조건에 따른 -10°C에서의 냉시동 평가 결과를 나타낸 것이다. 800mA/cm²에서 정전류로 30분간 운전 후 각 S/D 조건을 5분간 실시하였다. 1과 2조건은 강제 퍼지 없이 연료전지 차량에서 구현 가능한 S/D조건으로 물량이 가장 적을 때(1번)와 가장 많을 때(2번)를 나타낸 것이고, 3번은 30초 동안 무가습 가스를 이용하여 퍼지를 실시한 것이다. 평가 결과 1번의 경우 -10°C에서 안정적인 냉시동성을 나타냈지만 2번의 물량이 상대적으로 1번에 비해 많은 경우에는 외각셀에서 부분적인 역전압이 나타났다. 3번 조건은 냉시동은 가능하였으나 최소전압이 0.176V로 매우 낮게 나타나 동일 조건으로 더 낮은 온도에서는 불가능할 것으로 보여 과도하게 퍼지함으로 셀내 물을 제거하는 것이 오히려 냉시동성에는 않좋은 것으로 나타나 적절한 퍼지절차가 필요함을 알 수 있었다.

Table 1 S/D에 따른 냉시동 평가 결과

전류 량	S/D 조건 (Idle 운전 및 퍼지)		평가 결과 (60A 정전류 운전)
	유량 SR1.5/2.0	퍼지 SR1.5/2.0	
1	10A	40A	없음 냉시동 가능 최소V(0.484, 20번셀)
2	40A	40A	없음 냉시동 불가 최소V(-0.068, 20번셀)
3	10A	40A	250A (30초) 냉시동 가능 최소V(0.176, 20번셀)

3.6 초기 전류량에 따른 연료전지 냉시동 특성

연료전지 차량의 냉시동에 성공하기 위해서는 우선적으로 스택의 온도를 0°C 이상으로 빠르게 끌어올리는 것이 중요하다. 이때 자체 발열로 온도를 상승할 수 있게 하기 위해 연료전지 스택에서 전류를 발생시켜야 하고, 이를 위해 반응가스의 공급과 발생전류를 소모시킬 수 있는 전자부하와 같은 장치가 필요하게 된다. 이 때 시동 초기 전류량의 결정은 연료전지 냉시동 성공 여부에 밀접하게 관계되는데, 스택에서 발생되는 전류량이 높을 수록 생성열이 많아지는 장점이 있지만 일부 셀들에는 급격한 전압 강하로 역전압이 발생될 수 있다. 또한 적은 전류량에서는 초기 역전압 우려는 없지만 발생열이 작아 전기화

학반응에 의해 생성된 생성수가 얼음이 되고 촉매층에서 Iceblocking을 일으켜 냉시동에 실패하게 된다. 당사에서는 다양한 전류량에 대한 평가를 실시하였고, 약 200~350mA/cm²의 전류 조건에서 안정적으로 냉시동에 성공할 수 있었다.

하지만 연료전지 차량에는 강제로 원하는 전류를 일정하게 소모시킬 수 있는 전자부하와 같은 장치의 설치가 어렵기 때문에 당사에서는 Passive 저항체를 이용하여 저항체를 연결하였을 때 약 250mA/cm²의 전류량이 나올 수 있도록 저항체를 설계하여 20셀 스택에서의 검증을 실시하였고, 동일하게 안정적으로 냉시동이 가능함을 확인하였다. 이후 이를 스케일업하여 냉시동을 위한 연료전지 자동차에 적용하였다.

3.7 연료전지 차량 냉시동 결과

Fig 8은 연료전지 차량을 -15°C에서 냉시동할 때 시간에 따른 전압, 온도 변화 결과를 나타낸 그림이다. 전압이 낮은 7개의 셀전압 및 평균 전압을 나타내었고, 온도로는 Cathode outlet 온도를 나타내었다. 7개의 낮은 성능을 갖는 셀 위치는 모두 각 모듈의 외각셀임을 알 수 있었고, 평균 전압에 비해서도 낮은 전압 거동을 나타냄을 알 수 있었다. 하지만 전체적으로 안정적인 전압 거동으로 연료전지 차량에서도 냉시동이 가능함을 알 수 있었다.

대용량 스택 냉시동시에는 열손실을 막기 위해 냉각 부동액을 순환하지 않고, 또한 스택에 Thermocouple을 이용하여 직접적으로 온도를 측정하는 것이 어렵기 때문에 Cathode 출구의 온도를 스택의 온도로 선정하여 평가하였는데, 예비 평가 결과 실제 스택의 온도, 즉 분리판 온도보다 Cathode 출구의 온도가 약 10°C 정도 낮음을 알 수 있었고, Cathode 출구를 기준으로 냉시동 성공 여부와 냉각 부동액 순환 시점을 판단할 수 있었다.

또한 Dyno가 설치된 환경챔버에서 -15°C 주행 평가를 실시한 결과 일단 스택의 온도가 올라가게 되면 주행성에 영향을 미치지 않고 안정적으로 구동됨을 알 수 있었다.

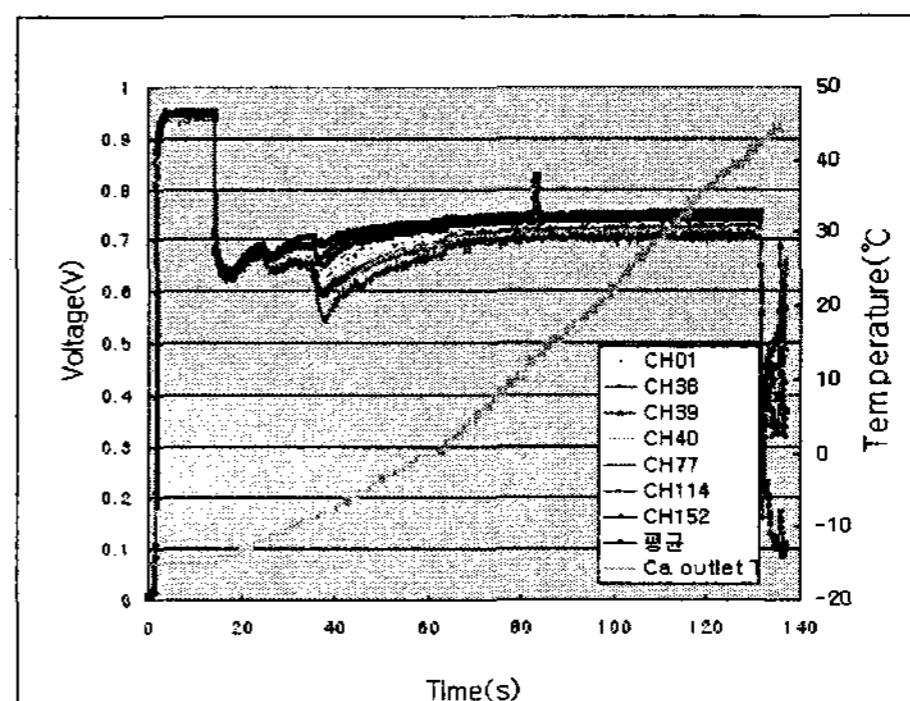


Fig. 8 체결기구에 따른 냉시동 특성

4. 결 론

PEMFC의 냉시동 기술은 확보되어야하는 중요 기술 중 하나로 당사에서는 아래와 같이 냉시동을 위해 개발된 기술들을 적용함으로 -15°C에서 안정적으로 냉시동 성능을 확보한 연료전지 차량을 개발하였다.

- 1) 안정적인 기밀 구조 확보를 통해 단일 루프 냉각 시스템을 도입함으로 시스템 및 제어 간소화를 이루었다.
- 2) 구조적으로 안정적이고 열전도율이 기존대비 1/4로 낮은 엔드플레이트/커런트컬렉터를 적용함으로 냉시동시 발생하는 온도편차를 줄여 냉시동 성능을 향상시켰다.
- 3) 냉시동 초기 최적의 전류량을 선정하여 이에 맞는 passive 저항체를 설계함으로 실차에서 냉시동 성능을 확보할 수 있었다.
- 4) 냉시동 성공여부 확인 및 부동액 순환 기점의 기준 온도로 스택내 분리판에 직접 thermo couple을 설치하지 않아도 Cathode outlet 온도로 판단 가능함을 알 수 있었다.

후 기

본 연구는 산업자원부 신·재생에너지 프로젝트형 기술개발사업인 “자동차구동용 80kW급 PEMFC 발전모듈 개발”의 일환으로 수행되었습니다.

References

- [1] E.A. Cho, J.J. Ko, H.Y. Ha, S.A. Hong, K.Y. Lee, T.W. Lim, And I.H. Oh, "Effects of water removal on the performance degradation of PEMFCs repetitively brought to <0°C", J. elecrochem. Soc. Vol 151, pp. 661-665
- [2] Qiangu Yan, Hossein Toghiani, Young-Whan Lee, Kaiwen Liang, Heath Causey, "Effect of sub-freezing temperattrue on a PEMFC performance, startup and fuel cell components" J. Power Source, Vol 160, pp. 1242-1250
- [3] M. Oszcipok, M.Zedda, D. Riemann, D. Geckeler, " Low temperature operation and influence parameters on the cold start ability of portable PEMFCs" J. Power Source, Vol 154, pp. 404-411