

가스확산층을 통과하는 반응가스 우회유동이 고분자 연료전지의 성능에 미치는 영향

조 중원¹⁾, 안 은진, 이 승보²⁾, 이 원용

The Effect of a Bypass Flow Penetrating through a Gas Diffusion Layer on Performance of a PEM Fuel Cell

Choong-Won Cho, Eunjin Ahn, Seungbo Lee, Won-Yong Lee

Key words : PEMFC(고분자연료전지), numerical simulation(전산해석), serpentine channel(사행유로), gas diffusion layer(가스확산층), gas permeability(가스 투과도), current density(전류밀도)

Abstract : A serpentine channel geometry often used in a polymer electrolyte membrane fuel cell has a strong pressure gradient between adjacent channels in specific regions. The pressure gradient helps some amount of reactant gas penetrate through a gas diffusion layer(GDL). As a result, the overall serpentine flow structure is slightly different from intention of a designer. The purpose of this paper is to examine the effect of serpentine flow structure on current density distribution. By using a commercial code, STAR-CD, a numerical simulation is performed to analyze the fuel cell with relatively high aspect ratio active area. To increase the accuracy of the numerical simulation, GDL permeabilities are measured with various compression conditions. Three-dimensional flow field and current density distribution are calculated. For the verification of the numerical simulation results, water condensation process in the cathode channel is observed through a transparent bipolar plate. The result of this study shows that the region of relatively low current density corresponds to that of dropwise condensation in cathode channels.

Nomenclature

ASR: area specific resistance, $\Omega \cdot m^2$
 f_{Gore} : correction factor for Gore membrane
 λ : water content
 σ : conductivity, S/m
 ϵ_{ion} : volume fraction of ionomer

1. 서론

고분자 연료전지는 낮은 작동온도, 높은 출력 밀도, 빠른 시동 등 여러 장점을 갖고 있지만 상용화를 위해서는 몇 가지 중요한 문제를 해결해야 한다. 이러한 문제들 중 가장 중요한 사안은 물과 열의 배출로서 이를 해결하기 위해 여러 가지 형태의 분리판 유로형태가 개발되었다. 대표

적인 분리판 유로형태로는 평행유로(parallel channel)와 사행유로(serpentine channel)가 있다. 평행유로에서는 다수의 직선유로가 병렬로 배열되어 있지만 사행유로는 ㄷ 형태로 수 회 구부러진 하나의 유로로만 구성된다. 이러한 사행유로(serpentine channel)는 물배출 성능이 우수하다고 알려져 있다⁽¹⁾. 사행유로에서는 반응가스가 단 하나의 유로만을 통과하기 때문에 상대적으로 높은 유속을 유지할 수 있으며, 결과적으로 기체가 갖고 있는 모멘텀이 증가하여 채널내부에 응축된 액적을 배출하는데 매우 유리해진다. 그러나 이 경우 유로의 길이가 매우 길어지기 때문에 입출구의 압력

1) 한국에너지기술연구원 고분자연료전지연구단
E-mail : cwcho74@kier.re.kr
Tel : (042)860-3012 Fax : (042)860-3104
2) 한양대학교 기계공학과

손실이 필요 이상으로 커지며 유로가 직선 형태를 유지하지 못하고 ㄷ 형태가 필요 이상으로 반복될 수밖에 없다. 따라서 평행유로와 사행유로가 서로 혼합된 형태인 평행사행유로(parallel-serpentine channel)가 널리 사용된다. 평행사행유로는 다수의 사행유로를 병렬로 배열한 것으로 유로의 길이와 구부러진 횟수도 적절한 수준으로 줄일 수 있다.

일반적으로 사용되는 사행유로가 평행유로와 비교하여 갖게 되는 가장 큰 특징 중 하나는 인접한 유로 간에 매우 큰 압력차이가 존재한다는 점이다. 이러한 압력 차이는 반응가스가 벽과의 마찰로 인해 잃어버리게 되는 압력손실로 발생하는데 이로 인하여 그림 1의 화살표 방향으로 흐르는 유동이 발생할 수 있다. Kanezaki⁽²⁾ 등은 이러한 압력차이로 인하여 상당한량의 반응가스가 가스확산층(GDL)을 통과하여 인접한 유로로 흘러간다는 사실을 지적하며 이러한 GDL 우회유동이 국부적으로 반응가스를 촉매층에 더욱 쉽게 공급시켜 전류밀도를 높여주고 GDL에 응축된 물 제거에 도움을 준다고 주장하였다. 하지만 Kanezaki 등은 하나의 유로만을 가지는 단일 사행유로만을 고려하였다. 실제로 널리 사용되는 평행사행유로의 경우에는 독립적으로 공급되는 여러 개의 사행유로가 존재하기 때문에 GDL로 우회하여 흐르는 반응가스의 흐름이 연료전지의 성능에 끼치는 영향은 좀 더 복잡한 형태를 가진다. 즉 여러 개의 사행채널을 가지는 유로형태에서는 GDL을 통한 우회 유동이 그림 1에서와 같이 특정영역에서 특정 유로에서만 발생하게 된다. 따라서 이러한 GDL 우회유동이 성능에 끼치는 영향에 대한 정량적 연구가 필요하다. 본 연구에서는 이러한 GDL 우회유동이 연료전지의 전류밀도 분포에 가하는 영향을 수치해석을 사용하여 분석하였고 물 분포와 전류밀도 분포와의 연관성을 찾기 위하여 투명셀을 사용한 검증을 수행하였다.

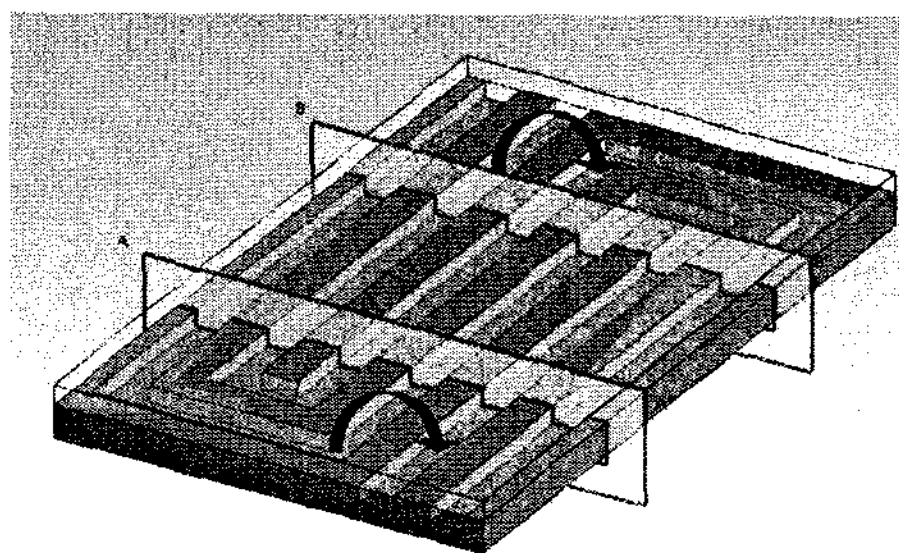


Fig. 1 Schematic of bipolar plate with a serpentine flow channel

2. 실험장치

2.1 가스확산층 투과도 측정

본 연구의 목적은 GDL 평면과 평행한 방향으로 흐르는 GDL 우회유동의 예측을 목적으로 하기 때문에 이를 측정하기 위해 그림 2와 같은 장치를 제작하여 실험하였다. 평면방향의 투과도를 측정하기 위해 시편의 중앙에 공기를 주입하고 시편 중앙부압력과 외부압력의 차이를 측정 후, Darcy 법칙으로부터 유도된 다음의 식을 이용하여 투과도 값을 얻어내었다. 또한 실험의 신뢰수준을 높이기 위해 12개의 GDL시편을 제작한 후 반복실험을 통하여 평균치를 얻어내었다.

투과도는 물질의 다공도와 공극을 만들게 하는 지지체의 형상, 공극과 공극의 연결성 등에 의해 결정된다. GDL에 강한 물리적 손상이 없을 정도로 하중을 가한다면 지지체의 지름은 큰 변화가 없겠지만 공극의 연결성, 다공도 등은 크게 변할 것이다. 이중 특히 다공도는 유체가 지나갈 통로의 체적을 결정하는 값으로 GDL의 투과도에 가장 큰 영향을 끼치는 값이다. 하중에 따른 다공도 변화는 두께방향 변형을 측정하여 얻을 수 있으며 그 결과는 그림 3과 같다. 변형이 없는 상태의 다공도 값은 제조사에서 제공하고 있는 자료를 이용하였다⁽³⁾. 하중에 따른 GDL의 투과도 역시 두께방향 변형을 고려하여 계산되었으며 그 결과는 그림 4와 같다. 연료전지 체결시의 리브에서 GDL이 받는 압력을 20bar 정도라 가정하면 유로부의 GDL은 이보다 훨씬 작은 압력을 받게 될 것이다. 페이퍼 형태의 GDL인 경우 유로부의 GDL이 받는 압력은 리브의 10~20% 수준이다⁽⁴⁾. 따라서 유로부 GDL이 받는 응력을 리브측 GDL의 10% 라고 가정하면 리브에서의 투과도 값은 대략 $3.47 \times 10^{-12} \text{ m}^2$ 이며 유로부의 투과도 값은 $1.19 \times 10^{-11} \text{ m}^2$ 정도임을 알 수 있다.

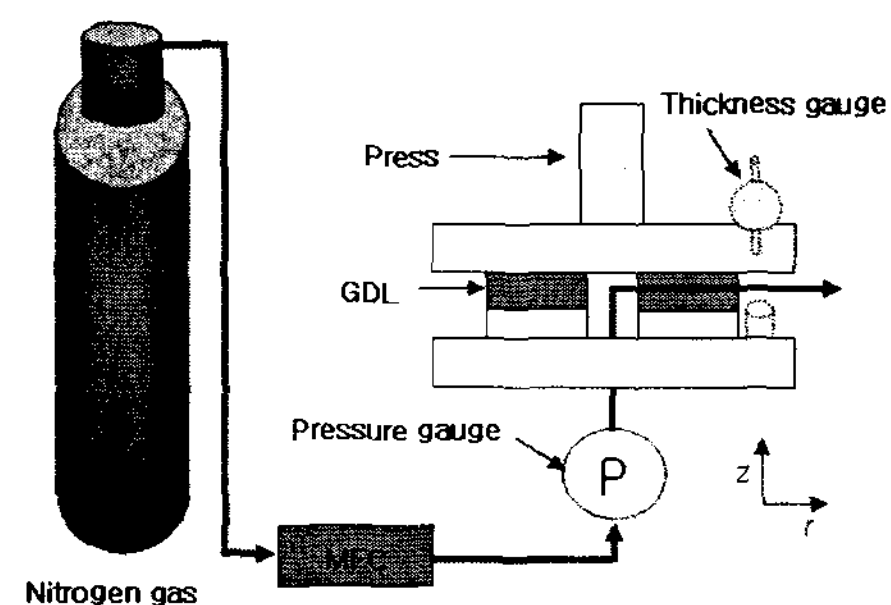


Fig. 2 Schematic of in-plane permeability and thickness measurements

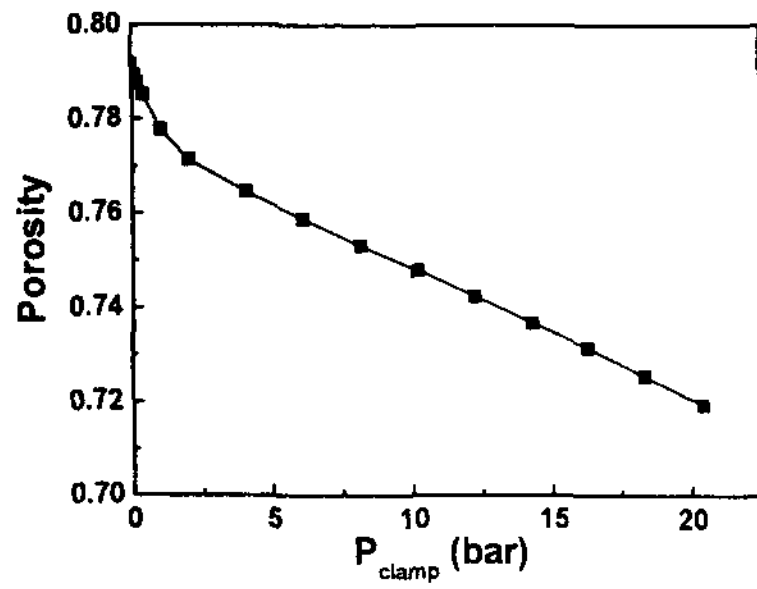


Fig. 3 Porosity variation as a function of clamping pressure

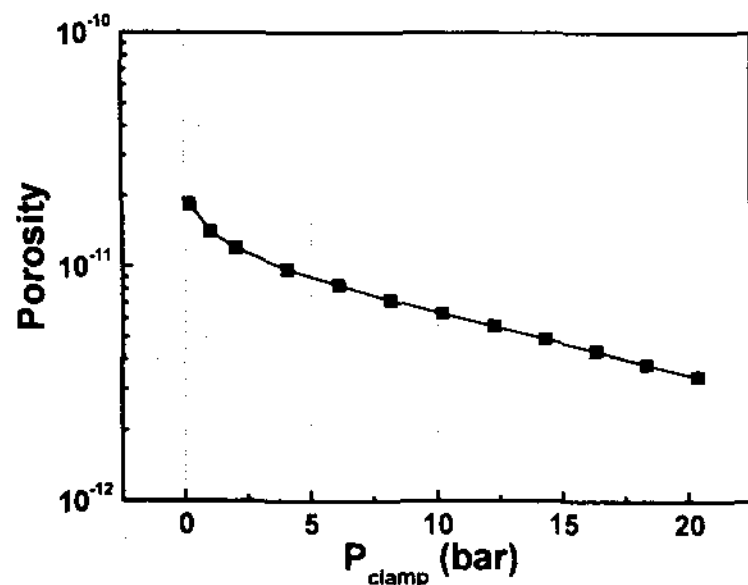


Fig. 4 Permeability variation as a function of clamping pressure

2.2 공기측 유로의 이상유동 관찰

연료전지 운전중 발생하는 공기측 유로의 이상유동(two-phase)을 관찰하기 위하여 Fig. 5와 같은 공기측 유로 가시화시스템(visualization system)을 제작하였다. 연료전지의 공기측에는 금도금 된 SUS를 투명한 폴리카보네이트에 부착시켜 유로의 액적 분포를 관찰할 수 있도록 하였다. 투명셀에 사용된 전해질막의 두께는 18 μm 이며, 부착된 촉매의 양은 0.4 Pt mg/cm² 이다. 또한 가스확산층은 MPL이 부착된 Sigracet[®] SGL10BC을 사용하였다. 연료극과 공기극의 유로는 2개의 사행유로로 구성되어 있으며 연료와 공기가 같은 방향으로 흐르는 병류방식(parallel flow)을 채택하였다. 투명셀의 작동조건을 조절하기 위하여 연료극쪽에 실리콘 가열판과 열전대를 부착하여 셀의 온도를 조절할 수 있도록 하였다.

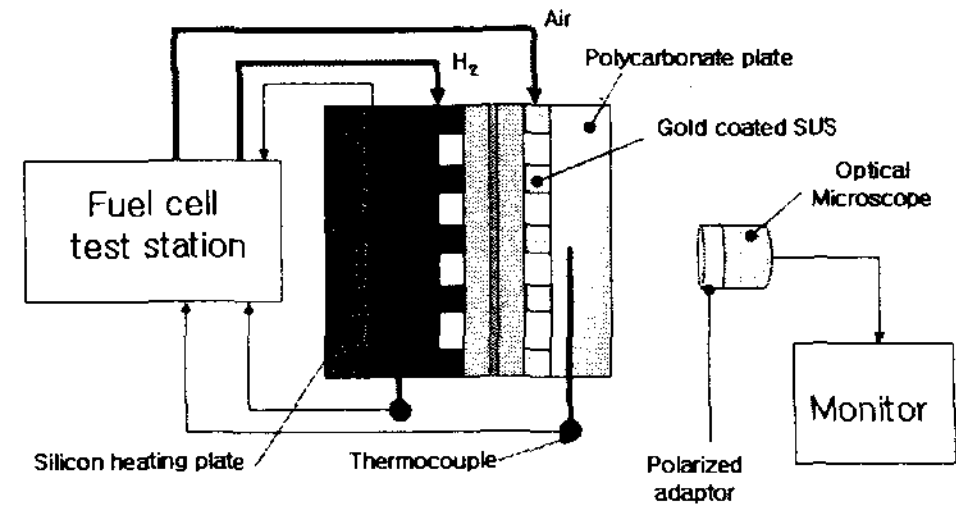


Fig. 5 Schematic of the transparent PEMFC

유로내의 이상유동을 확대 관찰하기 위하여 최고배율 160배가 가능한 광학현미경(KH-300)을 사용하였으며, 투명판에서의 반사를 최소화하기 위하여 편광어댑터를 달았다. 또한 Image Partner 라는 영상처리 프로그램을 사용하여 최대 30 frames/s 의 속도로 정지사진 및 동영상 촬영을 가능하게 하였다.

3. 연료전지의 전산해석

3.1 지배방정식

연료전지는 크게 반응가스 공급로 및 전자 이동로를 확보하기 위한 분리판 유로, 가스확산층, 촉매층, 고분자막으로 분리되며 각 영역별로 지배방정식의 형태가 약간씩 달라진다. 기체상태의 반응가스만을 가정한다면 지배방정식의 구성은 질량보존 방정식, Navier-Stokes 방정식, 에너지보존 방정식으로 구성되는 기존의 유체역학의 것과 크게 다르지 않지만 식(1)과 같은 전압과 전류에 대한 관계식을 추가로 고려해 주어야 한다. 활성화 과전압에 대한 관계식 H. Ju⁽⁵⁾ 에서와 사용된 것과 같은 상수들을 사용하였다.

$$V_{cell} = E^T - \eta_{an} - \eta_{ca} - \int_0^{t_{cat}} j dz dA SR_{catt} - ASR_{mem} I \quad (1)$$

연료전지의 촉매층과 전해질막이 갖는 면적비 저항은 이온전도도로부터 얻어낸다. 전해질막의 이온전도도는 물의 함수율 λ에 의해 다음과 같이 결정 된다⁽⁶⁾.

$$ASR_{cat} = ASR_{an} + ASR_{ca} \quad (2)$$

$$ASR = \int_0^{t_m} \frac{dz}{\sigma^{eff}[\lambda(z)]} \quad (3)$$

$$\sigma = (0.5193\lambda - 0.326) \exp\left[1268\left(\frac{1}{303} - \frac{1}{T}\right)\right] \quad (4)$$

촉매층의 이온전도도는 촉매가 함유하고 있는 이오노머의 양에 영향을 받기 때문에 Bruggemann 보정식을 사용하였다.

$$\sigma^{eff} = \epsilon_{ion}^{1.5} \sigma \quad (5)$$

λ 는 대전된 $\text{SO}_3^- \text{H}^+$ 숫자에 대한 물분자 숫자의 비이다. 전해질 막의 물은 전기삼투와 확산으로 인하여 복잡한 거동을 보이기 때문에 막을 통과하는 물 분자의 이동을 다음과 같은 방정식으로 모사하였다.

$$J_{H_2O} = -\frac{\rho_{dry}}{M_{mem}} D_\lambda \nabla \lambda + \frac{I}{F} \frac{2.5}{22} \lambda \quad (6)$$

$$\nabla \cdot (J_{H_2O}) = 0 \quad (7)$$

3.2 격자계 및 경계조건

수치해석을 위한 격자계는 그림 6과 같은 직사각형 형태를 갖고 있으며 탄소분리판, 유로, 가스확산층(GDL), 촉매층, 전해질막으로 구성되어 있어 분리판에서의 열전달과 촉매층에서의 전류밀도를 예측할 수 있도록 하였다. 수소측과 공기측의 반응가스 같은 흐름방향을 갖는 평류방식(parallel flow)이며 각각 2개의 유로를 갖고 있다. 온도에 대한 경계조건은 수소측과 공기측의 분리판에서 일정온도조건 $70^\circ\text{C}/65^\circ\text{C}$ 를 사용하였다. 또한 작동전압은 0.5V로 설정하였다.

GDL이 유로로 파고드는 효과를 반영하기 위하여 압력에 대한 GDL 두께변화자료를 이용하였다. 즉 유로측 GDL의 받는 압력에서의 두께와 리브측 GDL이 받는 압력에서의 두께차이만큼 GDL이 유로로 파고들었다고 가정하였다.

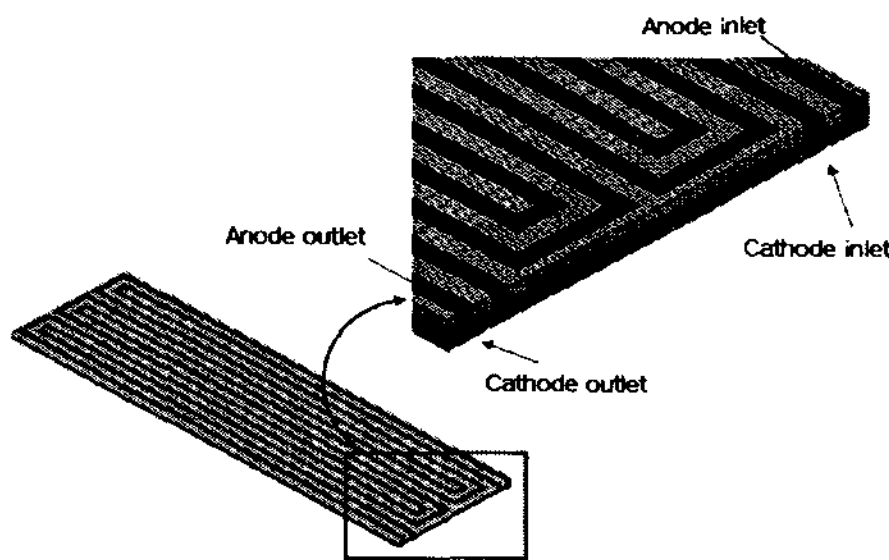


Fig. 6 Mesh configuration of numerical model with serpentine flow channels

4. 결과 및 토의

연료전지 내부의 압력의 분포는 유로를 흘러가는 반응가스의 흐름을 유추할 수 있는 좋은 정보가 된다. 그림 7를 살펴보면 공기측 유로의 압력손실은 약 4.6 kPa 임을 알 수 있다. 그러나 반응이 없는 상태에서 같은 길이의 유로를 이동할 때 발생하는 압력손실은 5.4 kPa 로 오히려 반응이 없는 상태가 압력손실이 높다. 공기측에서는 H_2O 가 생성된다는 사실을 고려하면 5.4 kPa 보다 높은 압력손실이 발생할 것으로 예측되나 해석결과는 이보다 15% 가량 낮은 압력손실을 보여주고 있다. 그림 8은 이러한 압력손실의 차이가 전체 유량의 일부분이 GDL을 통과하여 이동하기 때문이라는 사실을 보여준다. GDL을 통과하는 유동은 인접한 유로간의 강한 압력차에서 발생하는데 해석결과에 따르면 공기 평균유량의 약 12% 가 GDL을 통과하여 흐르고 있다. 따라서 GDL을 통과하는 유량만큼 유로를 통과하는 반응가스의 양은 줄어들게 됨으로써 전체적인 압력손실은 GDL 우회유동의 강도에 비례하여 감소하게 된다.

GDL 우회유동은 국부적으로 전류밀도를 증가시키는 효과를 불러온다. GDL에서의 물질전달은 일반적으로 확산으로 알려져 있으나 이와 같이 GDL을 통한 강한 대류현상이 발생할 경우 더욱 빠르게 반응가스가 촉매층으로 전달 될 수 있다. 즉 물질전달에 의한 손실이 크게 감소함으로써 전류밀도가 증가하게 된다. 그림 8은 수치해석을 통하여 이러한 현상이 예측됨을 보여주는 결과로서 GDL 우회유동이 발생하는 영역에서 정확하게 전류밀도가 증가하게 됨을 보여주고 있다. 하지만 우회유동의 결과로 연료전지의 좌측하단부는 반응가스의 공급이 부족하게 된다. 따라서 좌측하단부 리브영역의 전류밀도는 셀중앙부보다 30% 가량 작은 값을 보이고 있다.

공급가스의 부족은 전류밀도 분포뿐 아니라 유로내부의 액적생성에도 큰 영향을 준다. 그림 9는 전산해석의 형상과 동일한 투명셀을 운전하였을 때 보여지는 물 분포이다. 전산해석의 결과와 마찬가지로 좌측하단부에서만 많은 액적이 발생하였음을 알 수 있다. 전산해석에서도 이와 유사한 분포를 보이는 GDL에서의 상대습도 결과를 얻을 수 있다. 이러한 분포특성은 전산해석의 전류밀도 분포특성과 일치하는 것으로서 반응가스 우회현상으로 발생한 셀 모서리 부분의 반응가스 공급부족현상이 전류밀도와 물배출에 큰 영향을 주고 있음을 알 수 있다.

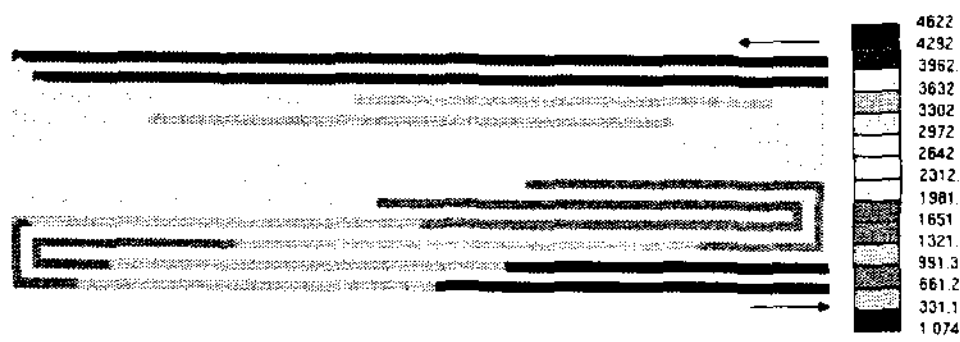


Fig. 7 Pressure contour in the cathode channels (Pa)

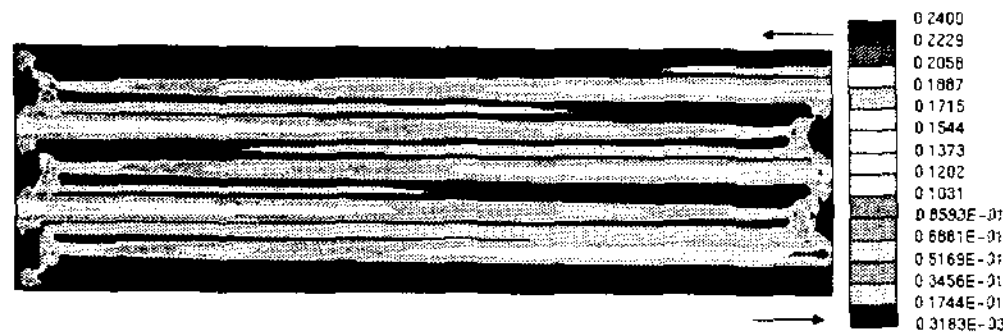


Fig. 8 Velocity magnitude distribution in the cathode GDL center (m/s)

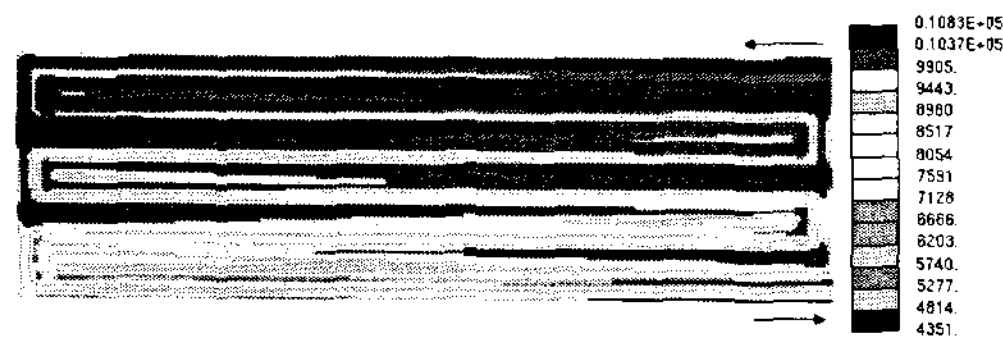


Fig. 8 Current density distribution (A/m²)

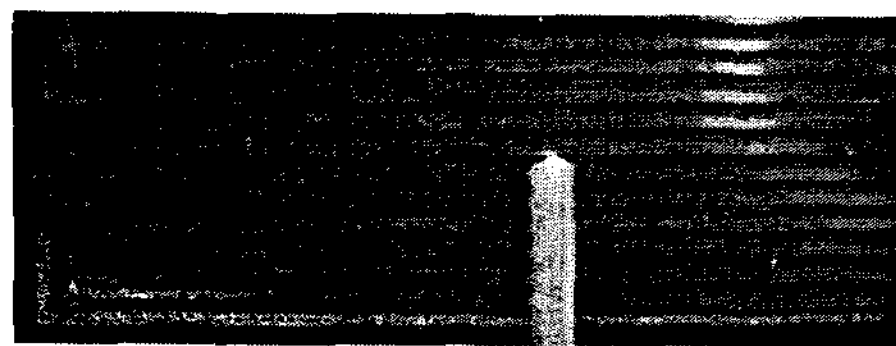


Fig. 9 Cathode channel flooding at left bottom triangular zone @V=0.5V, I= 0.91A /cm²

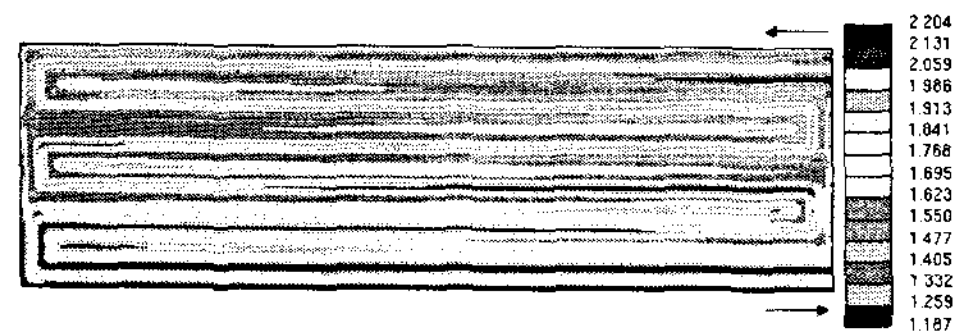


Fig. 10 Relative humidity distribution in the cathode GDL center

5. 결론

본 연구에서는 GDL을 통한 우회유동이 연료 전지의 성능에 끼치는 영향을 살펴보기 위하여 2개의 사행유로를 갖는 연료전지의 전류밀도 분포를 수치적으로 분석하였다. 해석의 정확도를 높이기 위하여 압력에 따른 GDL의 투과도 및 두께 변화를 측정하여 해석에 적용하였다. 실험결과에 따르면 분리판에 의하여 하중을 받게 되는 리브측

GDL의 투과도 값은 유로측 GDL 투과도 값의 30% 정도에 불과하다. 하지만 리브영역에서의 GDL 투과도 감소에도 불구하고, 수치해석의 결과에 따르면 공기극 반응가스의 약 12%가 GDL을 통과하여 흐르는 것으로 나타났다. 이렇게 반응가스가 GDL을 통과하는 영역에서는 주변부보다 높은 전류밀도분포를 갖는 결과를 얻어내었다. 하지만 우회유동으로 인하여 반응가스를 제대로 공급하지 못하는 지역에서는 30% 가량 낮은 전류밀도 분포를 보이고 있으며 액적의 발생량도 매우 크다는 사실을 알 수 있었다.

References

- [1] R. N. O'Hayre, S. W. Cha, W. Colella and F. B. Prinz, 2006, "FUEL CELL FUNDAMENTALS", John Wiley & Sons, 164-166.
- [2] T. Kanezaki, X. Li and J. J. Baschuk, 2006, "Cross-leakage flow between adjacent flow channels in PEM fuel cells", Journal of Power Sources, Vol. 162, pp. 415-425.
- [3] http://www.sglcarbon.com/sgl_t/fuelcell/pdf/Sigr-acet_GDL_10.pdf
- [4] J. Itonen, M. Kikkola and G. Lindbergh, 2004, "Flooding of Gas Diffusion Backing in PEFCs Physical and Electrochemical Characterization", Journal of the Electrochemical Society, Vol. 151(8), pp. A1152-A1161
- [5] H. u, H. Meng and C. Y. Wang, 2005, "A Single-Phase, Non-Isothermal Model for PEM Fuel Cells", International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol. 48, pp.1303-1315.
- [6] T. E. Springer, T. A. Zawodzinski and S. Gottesfeld, 1991, "Mathematical Model of the Solid-Polymer-Electrolyte Fuel Cell", Journal of the Electrochemical Society, Vol.138(8), pp. 2334-2342.