

## 2차원 정상상태 모델을 이용한 고분자전해질형 연료전지의 수소 재순환의 영향

정 현석<sup>1)</sup>, 하 태정<sup>2)</sup>, 김 효원<sup>3)</sup>, 조 성우<sup>4)</sup>, 한 종훈<sup>5)</sup>

### Effect of hydrogen recirculation in PEM fuel cell with 2D steady-state model

Hyunseok Chung, Taejung Ha, Hyowon Kim, Sungwoo Cho, Chonghun Han

**Key words** : PEMFC(고분자전해질형 연료전지), modeling(모델링), hydrogen recirculation(수소 재순환), steady-state model(정상상태 모델)

**Abstract** : 고분자전해질형 연료전지의 구조 및 구성품의 물성에 따른 성능 및 물이동 현상에 관해서 많은 연구가 진행되고 있다. 이들 연구는 대체적으로 연료 전지의 BOP(Balance of plant)를 포함하는 연료 전지 시스템에 관한 연구 보다는 단위 전지 및 스택에 관한 연구에 국한되어 왔다. 연료전지의 시스템에 관한 연구들 또한 세부적인 연료전지 내부의 거동에 대해서는 고려하지 않고 있었다. 이는 연료전지의 상세 모델을 이용해 연료전지 시스템에 대해 접근하기 보다는 시스템의 성능 및 동특성에 대한 연구가 주를 이루었기 때문으로 생각된다. 본 연구에서는 연료전지 음극의 수소 배출가스를 재순환할 경우 연료 전지 내부에서의 거동에 미치는 영향에 대해 2차원 정상상태 모델을 이용하여 분석해 보았다. 또한 재순환된 수소에 의한 연료전지 내부 거동의 변화 및 수소 이용률 상승 효과를 연료 전지 성능과 함께 비교해 보았다. 이를 위해 2차원 정상상태 모델을 개발하였고 이를 실험을 통해 검증하는 작업을 수행하였다. 여기에 사용된 연료전지 모델은 Gore社의 PRIMEa<sup>®</sup>을 사용한 연료전지의 성능을 잘 예측하고 내부의 유동 및 물이동 현상에 관한 정보를 제공한다. 이는 여러 하이브리드 자동차용 연료전지 시스템이 연료 전지 배출가스의 재순환을 고려하고 있는 상황에서 연료전지 작동 조건의 최적화에 유용한 정보를 제공할 수 있다는 의의를 가진다.

#### Nomenclature

$c_f$  : fixed charge concentration  
E : cell potential, V  
E<sub>0</sub> : open circuit voltage, V  
F : Faraday constant, 96500 C  
H<sub>i</sub> : water content ratio  
i : cell operating current density, A/cm<sup>2</sup>  
j<sub>i</sub> : exchange current density, A/cm<sup>3</sup>  
m<sub>i</sub> : mass flow rate, g/min  
P : partial pressure, kPa  
p<sub>i</sub> : pressure, atm  
R : universal gas constant, 8.314 J/mol·K  
S<sub>i</sub> : source term  
T : temperature, K  
u : x-axis velocity, m/s  
V<sub>i</sub> : humid volume per mass, m<sup>3</sup>/kg  
v : y-axis velocity, m/s  
X<sub>i</sub> : molar fraction

$\epsilon$  : porosity  
 $\eta$  : electrode overpotential, V  
v : volumetric flow rate, L/min  
 $\sigma_m$  : proton conductivity in the membrane, 1/Ω·m  
Φ : potential, V

- 
- 1) 서울대학교  
E-mail : masterkg81@gmail.com  
Tel : (02)880-1568 Fax : (02)873-2767
  - 2) 서울대학교  
E-mail : taejung2@snu.ac.kr  
Tel : (02)880-1568 Fax : (02)873-2767
  - 3) 서울대학교  
E-mail : khwmy@naver.com  
Tel : (02)123-4567 Fax : (02)123-9876
  - 4) 서울대학교  
E-mail : farsys21@snu.ac.kr  
Tel : (02)880-1568 Fax : (02)873-2767
  - 5) 서울대학교  
E-mail : chhan@snu.ac.kr  
Tel : (02)880-1568 Fax : (02)873-2767

subscrip

- 0 : initial value
- a : anode
- c : cathode
- ij : species i,j
- in : inlet flow
- m : membrane
- out : outlet flow
- w : vapor

## 1. 서론

연료 전지는 다른 에너지 발전 장치에 비해 에너지 밀도 및 효율이 높고 유해한 배출 물질이 없어 친환경적인 차세대 에너지 발전원으로 각광 받고 있다. 특히 내연기관에 비해 높은 에너지 효율 때문에 내연기관과 이차전지를 이용하는 하이브리드 자동차 이후의 차세대 운송용 발전원으로의 사용에 대한 관심이 높아지고 있다. 연료 전지를 구성하는 부품 및 소재에 관련된 분야는 비약적으로 발전하고 있으며 이에 따라 연료전지 시스템의 설계에 대한 관심도 높아지고 있다. 본 연구에서는 연료 전지 내부에서 일어나는 여러 가지 전달 현상 및 전기화학 현상에 대한 물리적 모델을 개발하고 이를 시뮬레이션 결과와 실험 결과 비교를 통해 검증한다. 또한 수소 재순환을 고려한 연료 전지 시스템 모델을 구성하고 이를 이용해 수소 재순환이 연료 전지의 성능에 끼치는 영향에 대해 분석해 본다.

## 2. 실험 및 모델 개발

본 연구에서 초점을 맞추고 있는 연료 전지 시스템에서 수소 재순환의 영향에 대한 분석하기 위해 연료 전지 시스템을 구성하였고, 연료 전지 2차원 정상상태 모델 및 시스템 모델을 개발하였다.

### 2.1 실험

실험은 자체 제작한 단위 전지를 통해 이루어졌다. MEA는 Gore社의 PRIMEa<sup>®</sup>를 사용하였고, 유로 형상은 parallel serpentine type이다. 단위 전지의 크기는 7cm×7cm로 총 50cm<sup>2</sup>이며, 가습을 위해서 Perma Pure社의 가습기를 사용하였다.

### 2.2 모델 개발

모델은 기본적으로 2차원 평면 상에서 정상상태 임을 가정하였고, 내부의 유동은 Laminar flow로 가정하였다. 본 연구에서 대상으로 하는 2차원 연료전지의 구조도는 Fig.1.에 나타내었다.

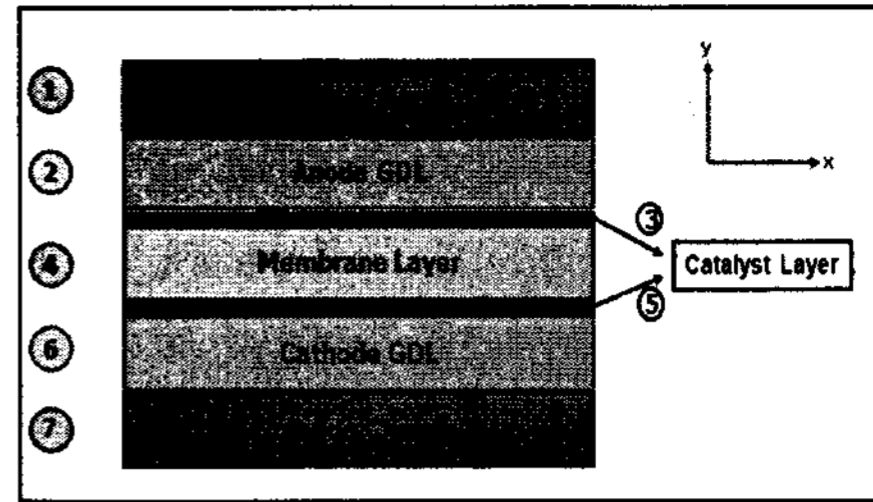


Fig. 1 Structure of the 2D model

단위전지를 총 7개의 단으로 나누고 전체를 하나의 도메인으로 구성하였다. 1번 단은 음극의 유로로 가습된 수소 기체가 free path로 흐르게 된다. 2번 단은 음극의 가스확산층으로 1번 단의 가습된 수소 기체가 확산과 대류 현상으로 3번 촉매 단으로 전달시키는 역할을 한다. 3번 음극 촉매층에서는 2번 단을 통해 전달된 수소가 proton과 전자로 쪼개지게 반응이 일어나게 도니다. 여기서 생성된 전자는 외부 회로를 통해 5번 양극 촉매층으로 이동한다. 4번 멤브레인 단에서는 3번 음극 촉매층의 반응으로 생성된 proton만을 5번 양극 촉매층으로 선택적으로 투과시키는 전달 현상이 일어나게 된다. 7번 양극 유로에는 가습된 공기가 흐르게 된다. 여기서 흐르는 가습된 공기는 확산과 대류 현상에 의해 6번 가스확산층을 통해 5번 양극 촉매층으로 전달된다. 5번 양극 촉매층에서는 멤브레인 단을 통해 전달된 proton과 외부 회로를 통해 전달된 전자 그리고 양극 기체 확산층을 통해 전달된 산소가 물을 생성하는 반응이 일어난다.

모델을 여러 개의 도메인으로 구성하는 경우도 있지만 이는 시뮬레이션 수행 시 들어가는 계산 작업량이 과도하다는 단점이 있어 본 연구에서는 하나의 도메인으로 전체의 모델식을 포함하도록 구성하여 전체 단을 동시에 계산하였다.

모델의 지배 방정식은 기본적으로 무차원 transport equation을 이용하였고 각 단의 특성에 따라 Navier-Stokes 식에 생성항을 추가하는 방식으로 모델을 구성하였다. 일례로 기체 유로 내에서의 유동에 대한 속도, 농도 및 전위 분포 현상은 다음과 같은 지배방정식으로 표현되었다.

여기서  $\rho$ 는 기체의 밀도,  $\mu$ 는 기체의 점성도이다. (1)식은 연속 방정식이고, (2), (3)식은

Mass Conservation

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0 \quad (1)$$

Momentum Conservation

$$\frac{1}{\varepsilon} \rho \left( u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} \right) = -\varepsilon \frac{\partial p}{\partial x} + \mu \left( \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \right) + S_x \quad (2)$$

$$\frac{1}{\varepsilon} \rho \left( u \frac{\partial v}{\partial x} + v \frac{\partial v}{\partial y} \right) = -\varepsilon \frac{\partial p}{\partial y} + \mu \left( \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} \right) + S_y \quad (3)$$

Species Conservation

$$\frac{1}{\varepsilon} \left( u \frac{\partial X_k}{\partial x} + v \frac{\partial X_k}{\partial y} \right) = \varepsilon D_k \left( \frac{\partial^2 X_k}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 X_k}{\partial y^2} \right) + S_k \quad (4)$$

Charge Conservation

$$\frac{\partial}{\partial x} \left( \sigma_n \frac{\partial \Phi}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( \sigma_n \frac{\partial \Phi}{\partial y} \right) + S_\Phi = 0 \quad (5)$$

Navier-Stokes 식으로 이 세 식은 속도 분포에 대한 정보를 제공한다. (4)식은 조성에 대한 정보를 제공하고, (5)식을 통해 전위 분포를 계산한다. (2), (3), (4), (5)식의 마지막 항은 생성항으로 각 단의 특성을 반영하도록 구성되었다.

최종적으로 단위전지의 전압은 다음 식에 의해 계산된다.

$$E = E_o - |\eta_a| - |\eta_c| - \frac{i_{avg}}{\sigma_m} \quad (6)$$

연료전지 시스템 모델의 구성도는 Fig. 2.에 나타내었다.

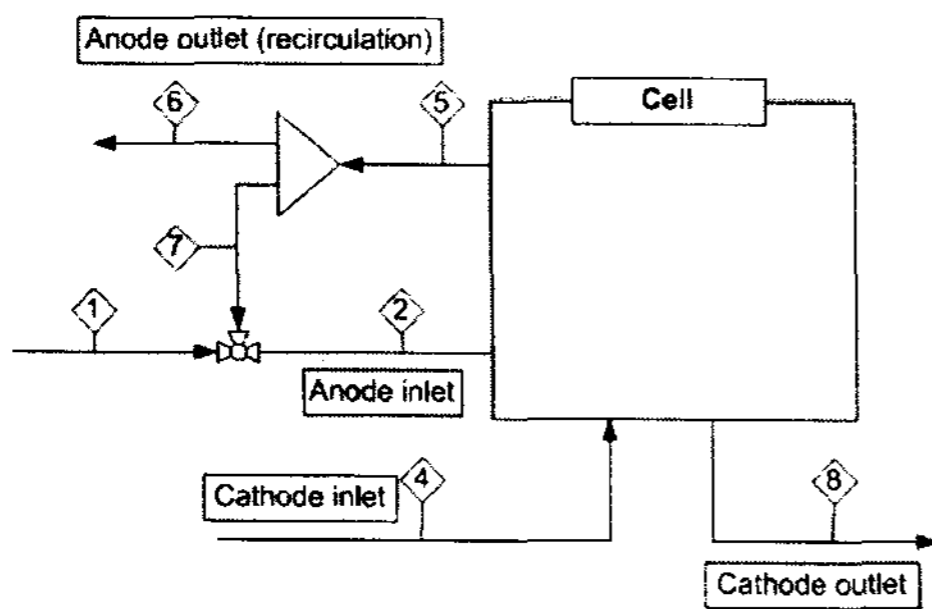


Fig. 2 Structure of the PEMFC system model

연료전지 시스템 모델은 연료전지 정상상태 구동 시 각 흐름별 유량과 구성 성분비를 계산하도록 되어 있다. 연료전지 시스템 모델에 사용된 수치식은 다음과 같다.

$$i = \frac{j \times A_{cell}}{i_{com}} \quad (7)$$

$$v_{in, H_2, a} = \frac{R \times T_{air}}{P_{atm}} \left( \frac{i}{n(H_2)F} \right) \times Stoic_a \quad (8)$$

$$v_{in, air, f} = \frac{R \times T_{air}}{P_{atm}} \left( \frac{i}{n(O_2)F} \right) \times Stoic_c \times Stoic_{air, O} \quad (9)$$

$$\dot{m}_{in, vapor, a} = \frac{P_{atm} \times M_w(H_2O) \times v_{in, vapor, a}}{R \times (T_{in, a} + 273.15)} \quad (10)$$

$$\dot{m}_{in, vapor, c} = \frac{P_{atm} \times M_w(H_2O) \times v_{in, vapor, c}}{R \times (T_{in, c} + 273.15)} \quad (11)$$

$$v_{vapor, cell} = \frac{R \times T_{cell}}{\left( P_{atm} + \frac{P_{vapor, f}}{P_{kPa}} \right)} \times \left( \frac{i}{n(H_2)F} \right) \quad (12)$$

(7)식은 단위전지 운전 전류 밀도를 계산하고, (8), (9)식은 각 기체의 부피 유량에 대한 정보를 제공한다. (10), (11)식은 음극과 양극의 수증기 질량 유량을 계산하고, (12)식은 단위전지의 수증기 부피 유량을 계산한다. 이외에도 Mass balance을 기반으로 하는 식들로 연료전지 시스템 모델을 구성하였다.

## 2.3 시뮬레이션

시뮬레이션은 유한체적법(FVM)에 기반한 자체 제작 알고리즘을 이용해 계산하였다. 알고리즘은 하나의 지배방정식을 계산하는 부알고리즘과 지배방정식 세트 전체를 반복적으로 계산하는 주알고리즘으로 구성되어 있다. 계산은 work station 급 컴퓨터에서 수행되었다.

## 3. 결과 및 토의

단위전지 모델의 시뮬레이션 결과는 실험이 가능한 성능 곡선에 기반하여 검증하였다. 시뮬레이션은 실험과 동일한 유량, 온도, 가습 조건 하에서 수행되었고 그 조건은 Table.1과 같다.

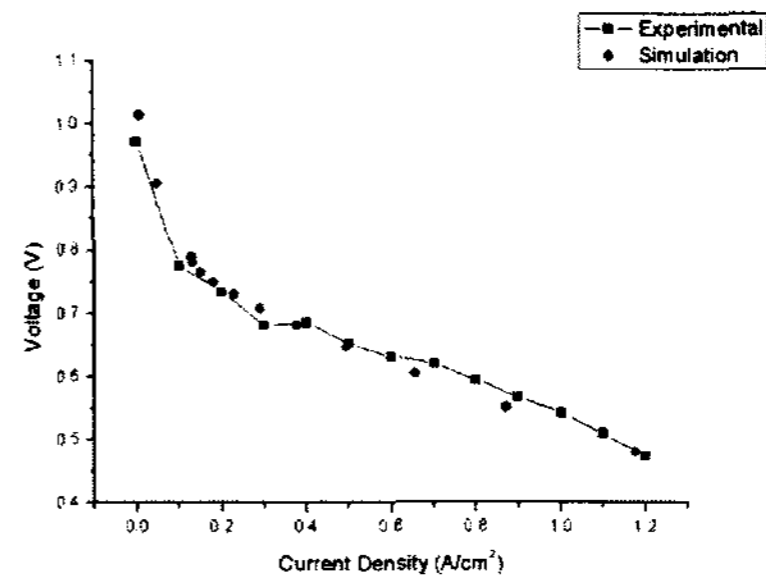
Table 1 실험 및 시뮬레이션 조건

실험 조건	
온도	65 °C
음극 유량	0.456 lpm
양극 유량	1.450 lpm
음극 Stoic.	X 1.5
양극 Stoic.	X 2
압력	1 atm

### 3.1 모델 검증

전류-전압 곡선의 실험 결과와 시뮬레이션 결과의 비교는 Fig.3.에 나타내었다.

Fig. 3 Expeintal polarization curve with simulation result



결과 비교를 보면 전류 밀도가 낮은 영역, 전류가 높은 영역 모두에서 실험 결과와 시뮬레이션 결과가 높은 정확도를 가지고 일치함을 볼 수 있다. 이는 본 연구에 사용한 정상상태 이론 모델에 단위전지 내부의 현상들이 잘 반영되어 있음을 알 수 있다.

### 3.2 기체 확산층 및 채널에서의 기체 분포

양극 유로와 양극 기체 확산층에서의 산소 기체 분포는 Fig.4.에 나타내었다.

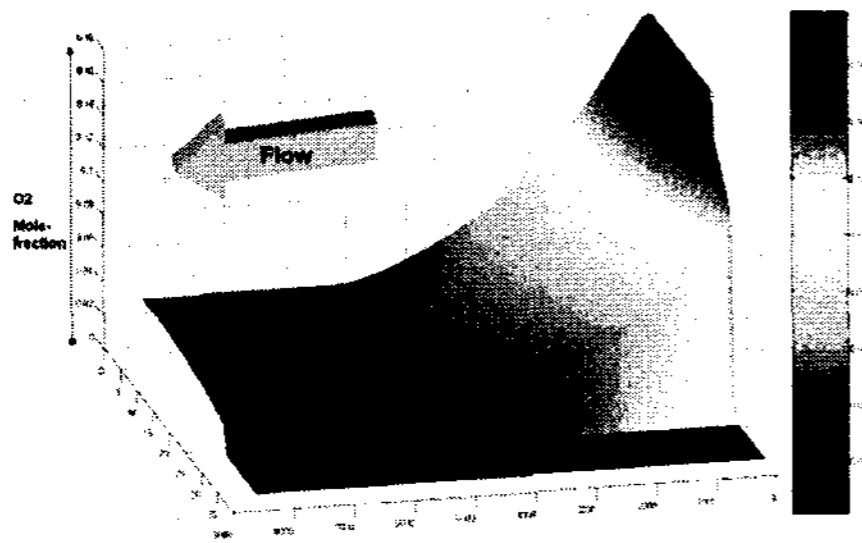


Fig. 4 Distribution of oxygen molar fraction through channel-GDL of cathode

양극 유로의 배출단에서 물분율이 매우 낮은 것은 양극의 산화제가 공기의 조성으로 주입되기 때문에 산소는 반응에 의해 소모되고 반응에 참여하지 않는 질소는 양극 기체에서 차지하는 비율이 배출단으로 갈수록 높아지기 때문이다.

#### 4. 결론

전류-전압 곡선의 결과 비교에서 보이듯이 본 연구에서 개발한 정상상태 이론 모델은 신뢰할 만한 수준이다. 이 모델은 연료 전지 내에서의 유동 현상 및 시스템 모델과의 연동이 가능하기 때문에 이를 이용하면 수소 재순환에 따른 연료 전지 내부의 거동 변화 및 성능 변화에 대한 유용한 정보를 얻을 수 있다.

이 연구 결과는 연료전지의 운전 조건 최적화에 필요한 동적 모델의 기반이 되고 기체-액상의 2상에 대한 모델로 수정될 경우 연료 전지의 설계에도 이용될 수 있다.

#### 후 기

본 연구는 산업자원부 신재생에너지기술개발사업의 일환(2005-N-FC12-P-01-3-040-2007)으로 수행되었습니다.

#### References

- [1] Spinger, T. E., Zawodzinski, T. A. and Gottesfeld, S., 1991, "Polymer Electrolyte Fuel Cell Model," J. of Electrochem. Soc., Vol. 138, No. 8, pp.2334-2348,
- [2] Patankar, S.V., 1980, "Numerical Heat Transfer and Fluid Flow," Hemisphere Publishing Corporation.
- [3] Um, S. K., Wang, C.Y. and Chen, K. S., 2000, "Computational Fluid Dynamics Modeling of Proton Exchange Membrane Fuel Cells," J. of Electrochem. Soc., Vol.

147, No. 12, pp.4485-4493,

- [4] Bird, R. B., Stewart, W. E. and Lightfoot, E.N., 1960, "Transport Phenomena," John Wiley & Sons, Inc.
- [5] B. Sunden, M. Faghri, 2005, "Transport phenomena in fuel cells," WIT Press.