

〈論 文〉

인산형 연료전지의 가스유로방향 변화에 따른 열 및 물질전달해석

전동협* · 정영식** · 채재우***

(1993년 12월 7일 접수)

Heat and Mass Transfer Analysis of Phosphoric Acid Fuel Cell According to Variation of Gas Flow Passage

Dong-Hyup Jeon, Young-Sik Jeong and Jae-Woo Chae

Key Words : Phosphoric Acid Fuel Cell(인산형 연료전지), Finite Difference Method(FDM ; 유한차분법), Z-Type(Z형태), Flow Passage(유로)

Abstract

The objective of this study is to investigate the effect of various parameters, such as temperature, mean current density and voltage on the performance of phosphoric acid fuel cell(PAFC) by numerical analysis. Two types of flow passages, which are Z-parallel type and Z-counter type, are evaluated to obtain the best current density and temperature distribution. Parametric studies and sensitivity analysis of the PAFC system's operation in single cell are accomplished. A steady state simulation of the entire system is developed using nonlinear ordinary differential equations. The finite difference method and trial and error procedures are used to obtain a solution.

기 호 설 명

C_p : 반응기체의 비열	S_p : 유로의 수력반경
F : 패러데이정수	Z : 반응전자수
ΔH : 자유엔탈피변화	α : 전달계수
h_p : 반응기체의 대류열전달계수	ψ : 작동전압
I : 전류밀도	ν : 기체의 동점성계수
K_x, K_y : X, Y 방향의 열전도도	
m : 반응기체유량	
P : 연료전지의 압력	
P_p : 유로의 피치	
Q : 계내의 전체열량	
R : 기체상수	
S : 열발생률	

1. 서 론

인산형 연료전지란 천연가스, 메탄올, 석탄 등의 연료를 수소와 같은 가스로 개질하고 이를 공기중의 산소와 직접 전기 화학적으로 반응을 일으켜 발전하는 시스템으로 공해배출물이 적고 발전효율 또한 높아 장래의 발전방식으로 각광을 받고 있다.⁽¹⁾

연료전지의 기본적인 원리는 오래전부터 알려진 바 있으나 이의 실제적인 이용은 미국에서 유인우

*인하대학교 대학원
**정회원, 인하대학교 대학원
***정회원, 인하대학교 기계공학과

주선에 사용된 것이 처음이며 최근 21세기의 주요 에너지원으로서의 역할을 수행할 것으로 전망되어 새로운 전력원의 개발과 고효율의 에너지변환 시스템개발에 연구력을 집중하고 있는 것이 세계적인 추세이다.⁽²⁾

현재까지 인산형 연료전지에 관한 연구는 다수 수행되어 왔고 가스통로에서의 연료 및 공기유동장내의 전달현상에 대한 연구 또한 활발히 진행되어 왔다. 그러나 대부분의 연구는 Straight-type에 관한 것이었으며^(3~6) 최근에서야 Z-type에 관한 연구가 몇몇 진행되고 있는 실정이다.^(7~8)

이에 본 연구에서는 Z-type의 인산형 연료전지에서 가스통로 형상을 변화(Z-parallel type, Z-counter type)시키면서 유입공기와 연료의 이용률, 압력 및 전류분포를 변수로 하여 정상상태의 온도분포, 전류밀도분포, 동작전압 등을 유한차분법(Finite difference method)에 의한 수치적해법을 이용하여 구함으로써 단위전지(single cell)의 성능에 관한 연구를 수행하였다.

본 논문에서는 Z-type 인산형 연료전지에서의 전달현상을 해석하기 위하여 유한차분 수식화기법을 제시하였으며 이 결과는 단위전지의 성능에 관한 기초자료로서 제안하고자 한다.

2. 이론적 고찰

2.1 기본방정식 및 가정

연료전지의 전달현상을 지배하는 방정식들은 반응기체의 특성, 전극표면에서의 기체의 반응율, 동작전압, 전류밀도, 온도분포 등을 동시에 포함하는 복잡한 편미분방정식으로 구성되어 있다. 따라서 전지의 성능을 해석하기 위해서는 연속방정식, 운동량방정식, 에너지방정식, 이온전달방정식을 동시에 풀어야 한다.

그러나 전지내 성능해석을 위한 전달현상을 지배하는 방정식들을 동시에 푼다는 것은 거의 불가능하다. 이에 수식을 단순화하기 위하여 다음과 같은 몇가지 가정을 하였다.

- (1) 연료 및 공기의 유로는 전극의 모든 표면에 걸쳐 폭과 깊이가 균일하다.
- (2) 연료 및 공기의 흐름은 모두 2차원, 이상기체, 층류유동이고 비압축성 유체이다.
- (3) 전지판에서의 전도에 의한 열전달과 연료 및 공기유로에서의 대류열전달 이외의 열전달은 무시

한다.

(4) 점성력과 관성력 이외의 힘의 효과(Γ), 점성에 의한 에너지소산(Φ), 전지내의 이온생성률(R_i)의 효과는 무시할 정도로 작다.

(5) 반응공기가 들어오는 벽면을 제외한 모든 벽면에서의 온도는 일정하다.

(6) 전지내에서의 단위면적당 열생성량은 일정하다.

(7) 연료 및 공기의 농도구배는 전구간에 걸쳐 일정하다.

(8) 전지의 두께는 무시할 만큼 얇다.

위와 같은 가정하에서 지배방정식은 다음과 같이 단순화 된다.

○연속방정식

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0 \tag{1}$$

○운동량방정식

$$u \frac{\partial u}{\partial x} = \nu \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \tag{2}$$

○에너지방정식

$$\begin{aligned} \rho C_p \left[u \frac{\partial T}{\partial x} + v \frac{\partial T}{\partial y} \right] \\ = K_x \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + K_y \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + S \end{aligned} \tag{3}$$

○이온전달방정식

$$\frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial y^2} = 0 \tag{4}$$

여기서, S는 화학반응에 의한 엔탈피의 변화량과 전류의 비가역성에 따른 열발생량의 총합이며 다음식으로 표시된다.

$$S = - \left[\frac{\Delta H_T}{ZF} - \psi \right] I \tag{5}$$

2.2 전압-전류 방정식

연료전지내 동작전압과 전류밀도 사이에는 밀접한 관계에 있어 다음과 같은 공식에 의해 계산되어진다.

$$V = E - \eta_t \tag{6}$$

이론발전 전압 E는 Nernst의 식으로부터 다음과 같이 표시된다.

$$E = 1.2605 - 0.00025 T + \left(\frac{RT}{ZF} \right) \ln \frac{P_{H_2} P_{O_2}^{1/2}}{P_{H_2O}} \tag{7}$$

여기서, P_{H_2} , P_{O_2} , P_{H_2O} (는 각각 H_2 , O_2 , H_2O)의 분압이다.

식(6)에서 η_i 는 전지전체의 손실전압으로 다음과 같이 구성되어진다.

$$\eta_i = \eta_a + \eta_r + \eta_{co} + \eta_d \quad (8)$$

η_a 는 활성화분극전압으로 전지내에서 전류가 발생할 때 반응생성물의 활동도를 저하시키므로 발생하는 손실전압으로 다음과 같이 표시된다.

$$\eta_a = \frac{RT}{2aF} \ln \frac{I}{I_0 S_a C_L C_u} \quad (9)$$

$$I_0 = 2327 P_{O_2}^{0.8} P_{H_2}^{0.4377} \cdot \exp\left(\frac{-6652}{T}\right) \quad (10)$$

여기서, I_0 는 교환전류밀도, S_a 는 촉매의 유효표면적, C_L 은 촉매의 부착표면밀도, 그리고 C_u 는 촉매의 이용율이다.

η_r 는 저항분극으로 전해질용액이나 전극의 전기저항에 의한 전압강하에 의한 손실전압으로 다음과 같이 나타내어진다.

$$\eta_r = I \cdot r(T) \quad (11)$$

$$r(T) = r_o \cdot \exp\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{450}\right) \quad (12)$$

여기서, r_o 는 450(K)에서의 전지의 내부저항이다.

η_{co} 는 농도분극전압으로 이온의 전달이 전극반응에 의한 속도보다 느려서 전극표면의 전해질농도가 낮기 때문에 발생되며 다음과 같다.

$$\eta_{co} = 0.0782 P_{co_o} \cdot \exp\left(9190\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{450}\right)\right) \cdot \ln \frac{i}{C_{La} S_a C_{ui} a_o} \quad (13)$$

여기서, i_{a_o} 는 한계 전류밀도이다.

η_d 는 확산분극전압으로 전극반응의 속도가 대류 등의 물질수송과정에 의해 지배되며 높은 전류밀도에서 나타나므로 확산에 의한 전압손실은 무시하였다.

3. 수치해석

3.1 수치해석 모델

본 연구에서는 Fig. 1의 Z형 연료전지에서의 해

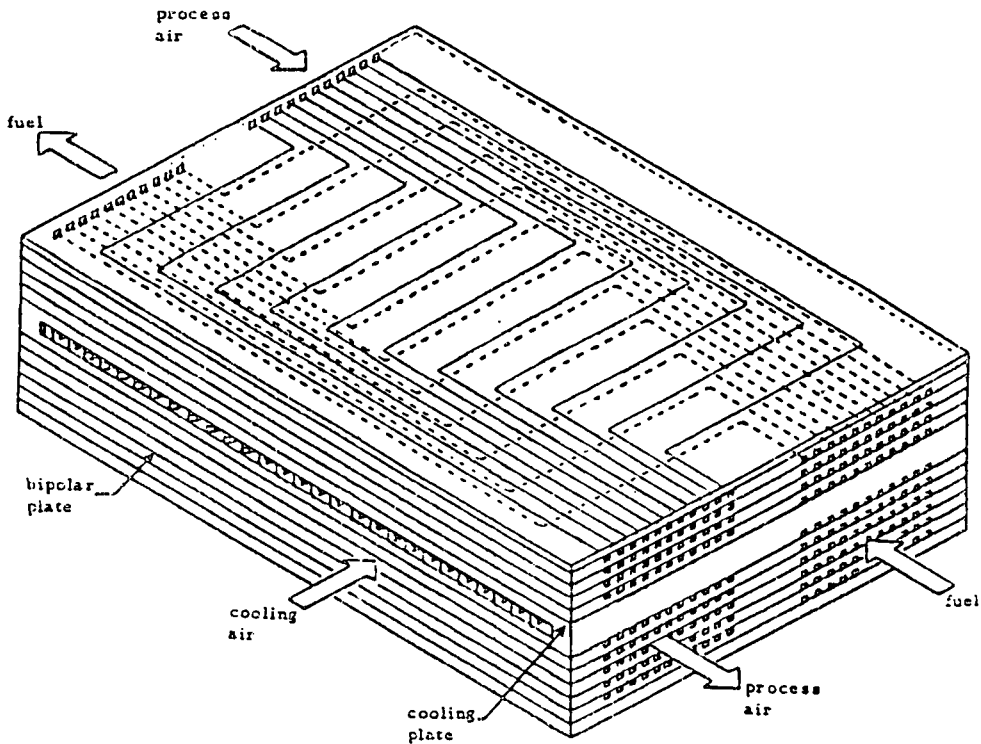


Fig. 1 The Z-type air-cooled stack concept

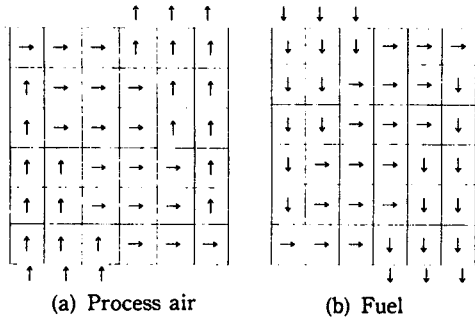


Fig. 2 The grid section and mass flow distribution Z-counter type channel

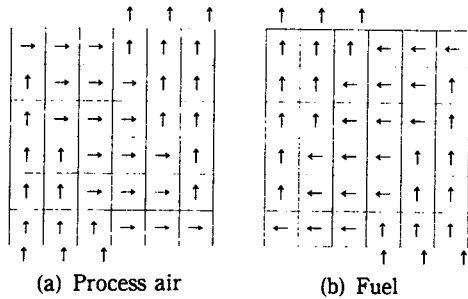


Fig. 3 The grid section and mass flow distribution Z-parallel type channel

석을 단순화하기 위하여 x , y 축 방향으로 각각 6 구간씩 균일하게 나누었으며 기체의 유동에 따른 연료와 산소의 물질전달을 고려하여 크게 3영역으로 나누었다. (Fig. 2, 3)

I — 입구방향부분

II — 수평방향의 가운데부분

III — 출구방향부분

3.2 수치해석 방법

전지내의 온도분포는 전류밀도분포, 동작전압, 기체유로를 통한 대류 열전달계수 등과 직접 관련이 있으므로 우선 이들 3가지 변수들의 값을 구한 후 에너지방정식을 풀어서 결정된다.

3.2.1 전류밀도분포 계산

전류밀도분포는 유로를 통한 물질전달을 고려하여 물질균형식(14, 15, 16)에 의해 시행오차법으로 계산하였고 오차범위는 계산된 값들에 대한 초기설정값의 비가 10^{-3} 의 범위에 있도록 하였다.

$$m_oH_2(i, j) = m_iH_2(i, j) - \frac{I(i, j)A}{ZF} \quad (14)$$

$$m_oO_2(i, j) = m_iO_2(i, j) - \frac{I(i, j)A}{ZF} \quad (15)$$

$$m_oH_2O(i, j) = m_iH_2O(i, j) + \frac{I(i, j)A}{2ZF} \quad (16)$$

3.2.2 온도분포 계산

전극내 열전달, 열대류, 화학반응에 의해 온도분포가 얻어지고 열생성분포는 전류밀도분포로부터 얻어진다. 여기서 기체흐름방향으로의 열전도도는 열대류에 비해 무시할 만큼 작다고 가정하였다.

온도분포를 구하기 위한 각 영역에서의 적용방정식은 다음과 같다.

(1) I, III부분에서 전지판내의 에너지전달

$$\begin{aligned} & -\left(\frac{K_u \Delta x}{\Delta y^2}\right) T_{i,j-1} + \left(2\frac{K_u \Delta x}{\Delta y^2} + 2\frac{K_d}{\Delta x}\right) T_{i,j} \\ & -\left(\frac{K_u \Delta x}{\Delta y^2}\right) T_{i,j+1} - \left(\frac{K_d}{\Delta x}\right) T_{i+1,j} \\ & -\left(\frac{K_d}{\Delta x}\right) T_{i-1,j} + \left(\frac{m_p C_p}{P_p \Delta y}\right) (T_{p,i,j} - T_{p,i,j-1}) \\ & = (V^* - V) I_{i,j} \end{aligned}$$

(2) II부분에서 전지판내의 에너지전달

$$\begin{aligned} & -\left(\frac{K_v \Delta y}{\Delta x^2}\right) T_{i-1,j} + \left(2\frac{K_v \Delta y}{\Delta x^2} + 2\frac{K_d}{\Delta y}\right) T_{i,j} \\ & -\left(\frac{K_v \Delta y}{\Delta x^2}\right) T_{i+1,j} - \left(\frac{K_d}{\Delta y}\right) T_{i,j+1} \\ & -\left(\frac{K_d}{\Delta y}\right) T_{i,j-1} + \left(\frac{m_p C_p}{P_p \Delta x}\right) (T_{p,i,j} - T_{p,i,j-1}) \\ & = (V^* - V) I_{i,j} \end{aligned}$$

(3) I, III부분에서 반응공기유로와의 에너지전달

$$T_{p,i,j} = T_{p,i,j-1} + (T_{p,i,j} - T_{p,i,j-1}) (1 - e^{-\phi_{p,i,j}})$$

여기서 $\phi_{p,i,j} = \frac{h_{i,j} S_p}{M_p C_p} \Delta y$ 이다.

(4) II부분에서 반응공기유로와의 에너지전달

$$T_{p,i,j} = T_{p,i-1,j} + (T_{p,i,j} - T_{p,i-1,j}) (1 - e^{-\phi_{p,i,j}})$$

3.3 수치해석 절차

온도분포를 구하기 위하여 연립방정식을 세워 Gauss-Seidal의 반복계산법을 이용하여 구하였고 미소전지의 전압, 전류, 온도를 구하는 흐름도를 Fig. 4에 표시하였다.

수치해석 절차는 다음과 같다.

(1) Table 1의 초기조건을 이용하여 임의의 미소전지에서의 가스조성과 유량, 전극판, 전해질 등의 전기저항, 열전도도를 들을 설정한다.

- (2) 동작전압, 온도를 가정한다.
- (3) 해석에 관련된 상수 및 변수값을 계산한다.
- (4) 전류밀도분포를 계산한다.
- (5) 계산된 전류밀도분포를 구하기 위해서 열전도율 및 비열을 계산한다.
- (6) 전지의 온도분포를 구하기 위하여 온도분포

- 를 계산한다.
- (7) 에너지방정식에 의하여 온도분포를 계산한다.
- (8) 전압-전류계산과 함께 에너지방정식의 해가 수렴할 때까지 반복계산한다.
- (9) 평균온도, 평균전류밀도, 동작전압을 초기 설정치와 비교한다.
- (10) 계산된 값들이 초기설정치를 만족할 때까지 반복계산한다.

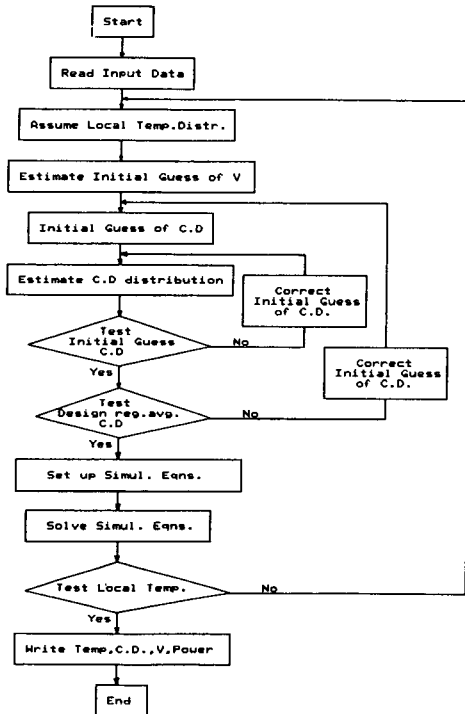


Fig. 4 Flow chart

Table 1 Input data

	Z-counter	Z-parallel
Area	930 cm ²	930 cm ²
Designed current density	0.17 A/cm ²	0.21 A/cm ²
Inlet temperature of fuel	450 K	450 K
Inlet temperature of process air	443 K	443 K
Operating Pressure	3.4 atm	3.4 atm
Utilization of H ₂	75%	75%
Utilization of O ₂	50%	50%

4. 해석결과 및 고찰

본 연구에서는 Z-parallel type과 Z-counter type 을 대상으로 온도에 따른 전류밀도와 전압의 영향을 고려하고 반응온도범위에서의 최적상태를 고찰하여 Table 1과 같은 입력조건을 도출하였다. 그리고 각각의 입력조건에서 압력, 공기의 이용율, 연료의 이용율 및 반응면적의 변화에 따른 연료전지의 성능을 고찰하였다.

Fig. 5와 Fig. 6은 각각 반응온도의 증가에 따른 평균전류밀도와 동작전압의 변화를 나타낸 것이다. 그림에서 알 수 있듯이 Z-counter type은 Z-parallel type에 비해 평균전류밀도는 높고 동작전압은 낮게 나타났다. 전지의 적정반응온도 범위가 180~200°C 인 것을 고려하여 설계전류밀도를 Z-counter type의 경우 2.1 A/cm², Z-parallel type의 경우 1.7 A/cm²로 정하여 각각 입력조건(Table 1(a), (b))으로 사용하였다.

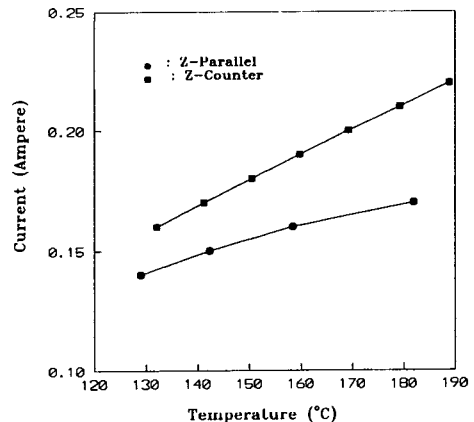


Fig. 5 Relation between mean temperature and mean current density

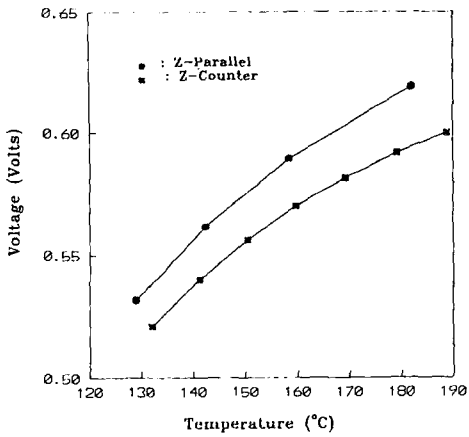


Fig. 6 Relation between mean temperature and cell voltage

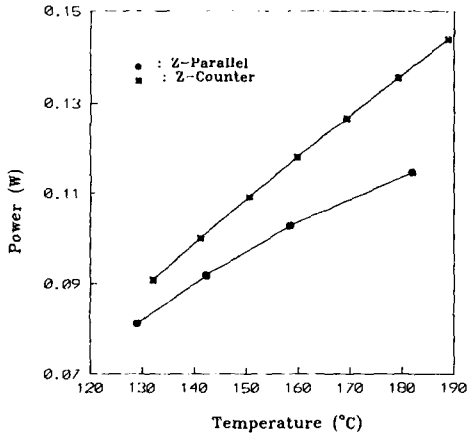


Fig. 7 Relation between mean temperature and power

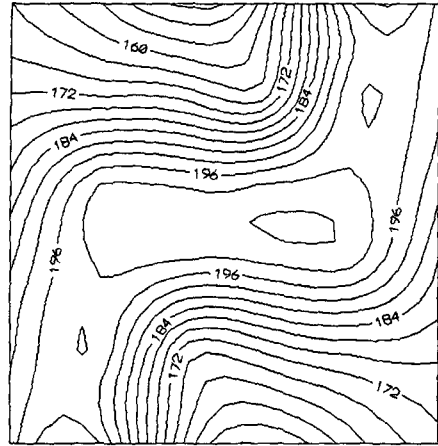


Fig. 8 Z-parallel type temperature distribution

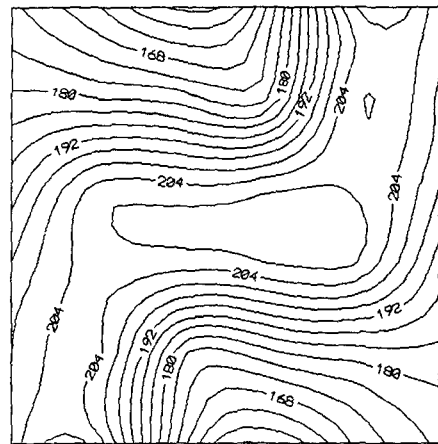


Fig. 9 Z-counter type temperature distribution

Fig. 7은 평균온도가 출력에 미치는 영향을 나타낸 것이다. 단위면적당 출력은 Z-counter type이 Z-parallel type보다 크게 나타나고 온도가 높아질수록 그차이 또한 커짐을 알 수 있다.

Fig. 8과 Fig. 9는 Z-parallel type과 Z-counter type의 온도분포도를 나타낸 것이다. 그림에서 알 수 있듯이 공기유로를 따라 일정하게 온도가 분포되어 있고 중앙부에서 최고온도를 보이고 있으며 이를 중심으로 대칭을 이루어 분포하고 있다. 또한 중앙부에서와 전지의외곽과의 큰 온도차를 보이고 있다.

Fig. 10은 Z-parallel type의 전류밀도분포도를 나타내는 그림으로서 공기의 입구부분에서 최고전류밀도를 연료출구부분에서 최저전류밀도를 각각

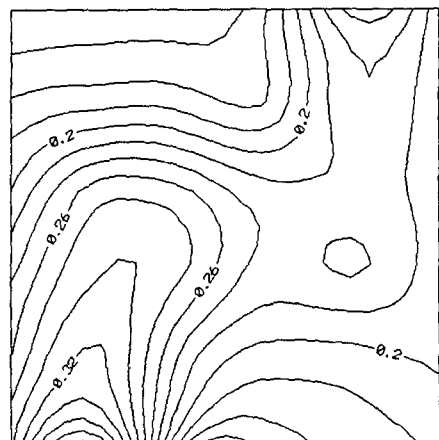


Fig. 10 Z-parallel type current density distribution

보이고 있으며 그차이는 크다. Fig. 11은 Z-counter type의 전류밀도분포도를 나타낸 그림으로서 중앙부를 중심으로 외곽으로 갈수록 전류가 점점 감소함을 알 수 있다.

Fig. 12는 작동압력을 2.0 atm에서 10.0 atm로 증가시켰을 경우의 온도변화를 나타낸 것이다. 그림으로부터 작동압력이 증가함에 따라 온도는 낮아짐을 알 수 있으며 Z-parallel type이 Z-counter type에 비해 감소폭이 크게 나타났다.

Fig. 13은 공기의 이용율이 평균온도에 미치는 영향을 나타낸 것으로 공기이용율의 증가에 따라 Z-counter type의 경우 온도는 증가하는 반면 Z-parallel type의 경우 온도는 오히려 감소한다. 이는 Z-counter type의 경우 공기이용율의 증가가 전지내의 반응을 활발히 일으켜 온도를 증가시키고 Z-parallel type의 경우 공기이용율의 증가가 전지내의 반응을 활발히 일으키나 공기입구와 전지중심에서의 과도한 반응으로 공기출구에서 O₂의 감소를 초래하여 국부적인 온도차를 심하게 일으켜서 결국 평균온도가 낮아지게 되리라 사료된다.

Fig. 14는 연료의 이용율이 평균온도에 미치는 영향을 나타낸 것이다. 그림에서 알 수 있는 바와 같이 연료이용율의 증가에 따라 온도는 증가하는 경향을 보이고 Z-parallel type은 Z-counter type에 비해 온도의 영향을 많이 받음을 알 수 있다.

Fig. 15와 Fig. 16은 반응면적이 각각 평균온도와 출력에 미치는 영향을 나타낸 것으로 반응면적이 증가함에 따라 평균온도와 출력 모두 증가함을 알 수 있다.

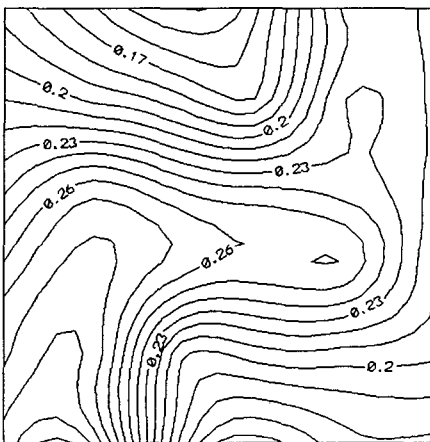


Fig. 11 Z-counter type current density distribution

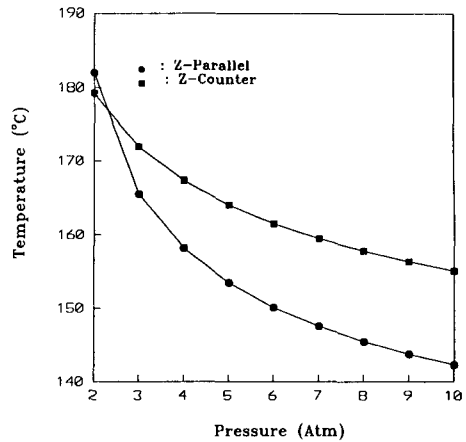


Fig. 12 Effect of pressure on mean temperature

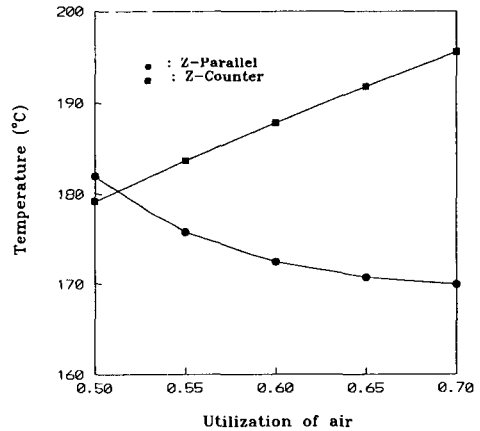


Fig. 13 Effect of utilization of air on mean temperature

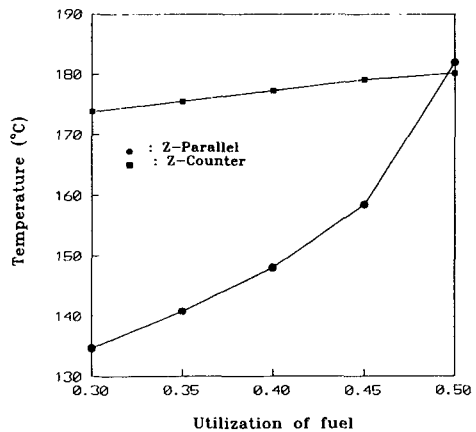


Fig. 14 Effect of utilization of fuel on mean temperature

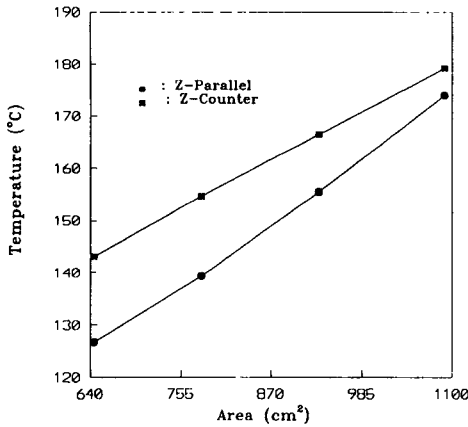


Fig. 15 Effect of cell area varying on mean temperature

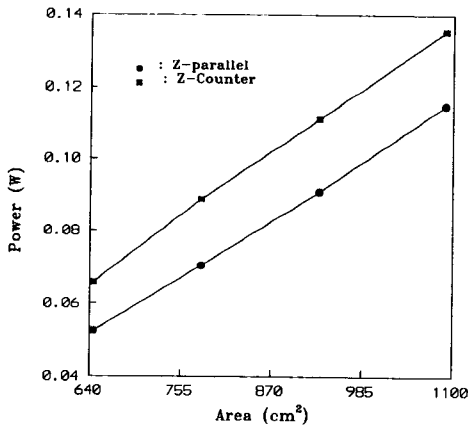


Fig. 16 Effect of cell area varying on power

5. 결 론

본 연구에서는 단위전지내에서의 최적성능조건을 얻기위해 공기의 이용율, 연료의 이용율, 작동압력, 전류밀도 등을 변화시키면서 Z-counter type 전지와 Z-parallel type 전지내의 온도분포, 전류밀도분포, 동작전압의 변화를 고찰하였으며 다음과 같은 결과를 얻었다.

(1) 온도의 증가에 따라 전류, 전압, 출력은 다소 증가하는 경향을 보였으며 Z-counter type의 단위면적당 출력은 Z-parallel type보다 크음을 알 수 있다.

(2) 단위전지내에서의 2차원 온도분포를 수치해법으로 구해본 결과 Z-counter type은 공기입구를

중심으로 그리고 Z-parallel type은 전지중심부를 중심으로 전지의외곽과의 온도와 전류밀도차가 심하게 일어남을 알 수 있다. 따라서 스택설계시 공기의 적절한 이용을 통한 냉각이 필요하다.

(3) 작동압력이 증가함에 따라 온도가 감소하므로 전지의 성능은 향상됨을 알 수 있다. 그러나 작동압력이 커짐에 따라 전지의 내구성이 문제가 되므로 설계시 적절한 선택이 필요하다.

(4) 전지내의 평균온도는 Z-counter type의 경우 연료의 이용율에 Z-parallel type의 경우 공기의 이용율에 크게 영향을 받음을 알 수 있다. 그러므로 Z-counter type과 Z-parallel type에서 연료 및 공기의 적절한 이용이 중요하리라 사료된다.

(5) 반응면적의 증가에 따라 출력이 증가함을 알 수 있는데 이는 면적이 증가하면 전지의 성능은 향상됨을 의미한다. 또한 면적증가시 온도가 상승하므로 전지내의 적절한 냉각을 통하면 용량이 큰전지를 제작할 수 있으리라 사료된다.

후 기

본 연구는 G-7 과제의 일환으로서 에너지기술연구소의 지원으로 수행되었으며 이에 감사의 뜻을 표하는 바입니다.

참고문헌

- (1) David Linden, 1984, *Handbook of Batteries and Fuel Cells*, McGraw-Hill Book Company, New York.
- (2) S. S. Penner, 1985, *Assessment of Research Needs for Advanced Fuel Cells*, DOE AFCWG.
- (3) Cheng-yi Lu and Kalil A. Alkasab, 1984, *Manual of Phosphoric Acid Fuel Cell Stack Three-Dimensional Model and Computer Program*, NASA CR-174722.
- (4) Cheng-yi Lu, 1983, *Transient Responses of Phosphoric Acid Fuel Cell Power Plant System*, Cleveland State University, Ph. D. Thesis.
- (5) 吳振勳, 1989, "인산형 연료전지(對向流) 특성에及ぼす冷却氣體の影響", 計測自動制御學會 論文集, Vol. 25, No. 3.
- (6) 박토순, 1991, "인산형 연료전지의 성능해석을 위한 단위전지내의 전달현상에 관한 연구," 충남

- 대학교, 석사학위논문.
- (7) Mohammad Farooque, 1983, *Evaluation of Gas-Cooled Pressurized Phosphoric Acid Fuel Cell for Electric Utility Power Generation*, NASA, CR-168298.
- (8) 채재우, 전동협, 1993, “인산형 연료전지내의 열전달에 관한 수치해석적 연구,” 대한기계학회 학술대회 논문집, pp. 17~21.
- (9) Yeong Woo Kim and Ju Seong Lee, 1993, “Fabrication and Operation of Small Scale Unit Cells for PAFC,” *The 1st Korea-Italy Joint Symposium on Fuel Cells*, pp. 49~58.
- (8) 채재우, 전동협, 1993, “인산형 연료전지내의

*알려드립니다.

대한기계학회논문집 제18권 제3호, pp. 600~611, 1994에 게재된 논문,
〈고속충격을 받는 CFRP 복합재료의 잔류강도 예측〉의 저자 중 김문생
교수의 소속을 변경합니다.

**정회원, 부산대학교 생산기계공학과→부산대학교 기계기술연구소