

모바일용 연료전지의 성능해석에 관한 연구

김광수*, 최종필*, 정창렬**, 장재혁**, 전병희***, 김병희#

A Study on the Performance Analysis of Mobile Fuel Cell

Kwangsoo Kim*, Jong Pil Choi*, Chang Ryeol Jeong*, Jae Hyeok Jang**, Byeong Hee Jeon***
and Byeong Hee Kim#

ABSTRACT

In this paper, a three-dimensional computational fluid dynamic model of a proton exchange membrane fuel cell(PEMFC) with serpentine flow channel is presented. A steady state, single phase and isothermal numerical model has been established to investigate the influence of the GDL (Gas Diffusion Layer) parameters. The GDL is made of a porous material such as carbon cloth, carbon paper or metal wire mesh. For the simplicity, the GDL is modeled as a block of material having numerous pathways through which gaseous reactants and liquid water can pass. The porosity, permeability and thickness of the GDL, which are employed in the model parameters significantly affect the PEMFC performance at the high current region.

Key Words : Polymer electrolyte membrane fuel cell (고분자전해질 연료전지), Computational Fluid Dynamics (전산유체역학), Gas diffusion layer (기체확산층), Porosity (기공도), Permeability (투과도)

기호설명

ρ = density, kg/m³
 ε = Porosity
 τ = viscous stress tensor
 μ = Viscosity
 k = permeability, m²
 η = overpotential, V
 ϕ = electrical potential, V
 σ = electrical conductivity, S

M = mixture molecular weight
 T = temperature, K
 j_e = exchange current density, A/m²
 i = current, A
 J = diffusive mass flux of species, kg/m²s
 p = pressure, atm
 Y = mass fraction
 U = velocity, m/s
 D_i = binary diffusivity, m²/s
 h = reaction enthalpy, J/kg

접수일: 2007년 4월 23일; 게재승인일: 2007년 11월 1일

* 강원대학교 기계메카트로닉스공학과 대학원

** 삼성전기㈜ 중앙연구소

*** 인덕대학 컴퓨터응용설계전공

교신저자: 강원대학교 기계메카트로닉스공학부

E-mail: kbh@kangwon.ac.kr Tel. (033)244-8910

1. 서론

휴대용 전자기기들은 기존의 휴대에 의한 편리성을 넘어 무선통신, 멀티미디어, 저장장치 등의 다기능을 동시에 갖춘 복합 시스템으로 진화하고 있다. 그러나 휴대용 전자기기들이 복합적인 기능을 발휘하기 위해서는 안정적인 전원공급을 위한 장치 개발이 필수적으로 이루어져야 한다. 따라서 기존 리튬이온 전지의 한계를 넘을 수 있는 연료전지의 개발이 요구되고 있다.¹

연료전지는 화학에너지를 직접 전기에너지로 변환시키는 발전장치로 기계적인 장치가 없기 때문에 효율이 높으며 환경친화적인 에너지변환방식이다. 특히, 고분자 전해질 연료전지는 높은 출력 밀도, 낮은 작동 온도, 짧은 작동시간과 구조가 단순하고, 작동 안전성을 지니고 있다. 그러나 고가의 재료와 비싼 가공비로 인하여 연료전지 제작 및 실험에 많은 어려움을 겪고 있다. 이러한 이유로 실제 실험을 통해 측정하기 힘든 전지 내 물질 반응 현상 해석, 다양한 구조적 변화와 공정조건의 변화에 따른 전지의 작동 특성을 효율적으로 평가하고 제어할 수 있는 장점을 지니고 있는 전산유체역학을 이용한 시뮬레이션에 대한 연구가 활발히 진행 중이다.^{2,5}

본 연구에서는 상용 전산유체역학 코드를 이용하여 고분자 전해질 연료전지의 구성요소 중 하나인 기체확산층(Gas Diffusion Layer)의 특성 변화에 따른 연료전지의 성능평가에 대한 시뮬레이션을 수행하였다.

2. 해석 모델 및 지배방정식

2.1 기본 가정

연료전지는 반응기체의 유동, 열전달, 전극표면에서의 전기화학 반응 등이 동시에 일어나며, 지배방정식은 복잡한 편미분방정식으로 구성되어 있다.⁵

본 논문에서는 다음과 같은 몇 가지 가정을 통하여 지배방정식을 단순화하였다.

- (i) 모든 반응기체는 이상기체로 가정하며 중력의 영향은 무시한다.
- (ii) 기체의 유동은 정상상태, 층류유동이다.
- (iii) 연료전지 내부의 압력 및 열손실은 없다.
- (iv) 기체확산층, 촉매층, 전해질막은 등방성으로

균일하며, 전해질막은 기체에 대해 불투과성을 갖는다.

(iv) 기체는 완전히 가습되었다.

2.2 해석 영역

본 논문에서는 연료전지의 물리·화학적 현상을 고려하기 위하여 다중물리 해석이 가능한 상용 전산유체역학 코드인 CFD-ACE 를 이용하여 해석을 수행하였다.

Fig. 1 은 본 논문의 CFD 해석에 사용된 단일 Serpentine 채널을 갖는 단위전지의 격자모델 및 해석 도메인을 보여주고 있다. 또한 격자모델에 적용된 단위전지 구성 요소들에 대한 치수는 Table 1 에 나타내었다.

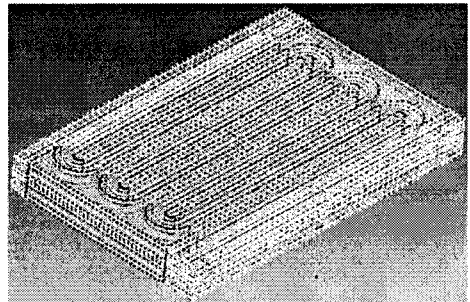


Fig. 1 Grids of computation domain

Table 1 Dimension of PEMFC components

Parameter	Dimension(mm)
Channel width	1
Channel height	0.5
Rib width	0.6
GDL thickness	0.25
Catalyst thickness	0.01
Membrane thickness	0.12

2.3 지배방정식

전산유체역학은 기본적으로 질량, 운동량, 에너지에 관한 보존법칙을 기본으로 하며, 이들 방정식은 여러 변수를 갖는 연립 비선형 편미분방정식으로 이루어져 있다. 이러한 편미분방정식을 컴퓨터를 이용하여 계산하기 위해 CFD-ACE 는 유한체적법(Finite Volume Method)을 이용하여 이산화한다. 유한체적법은 해석영역을 유한 개의 다각형 격자

로 나누고 이 격자 내에서 격자의 경계를 통해 출입하는 유동과, 이 유동으로 인해 영향을 받는 변수들 간의 보조방정식들로 이루어지며, 이들 미분방정식들을 모든 계산영역에 대해 체적 적분함으로써 근사해를 얻을 수 있다.⁵ 본 논문에서 사용한 질량보존(1) 및 운동량보존식(2)은 다음과 같다.

$$\frac{\partial}{\partial t}(\epsilon\rho) + \nabla \cdot (\epsilon\rho U) = 0 \quad (1)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\epsilon\rho U) + \nabla \cdot (\epsilon\rho U U) = -\epsilon\nabla p + \nabla \cdot (\epsilon\tau) + \epsilon B - \frac{\epsilon^2 \mu}{\kappa} U - \frac{\epsilon^3 C_F \rho}{\sqrt{\kappa}} |U| U \quad (2)$$

운동량보존식의 마지막 두 항은 연료전지의 전극 및 기체확산층(porous media)의 내부 벽면과 유체간에 발생하는 추가적인 항력(drag force)을 나타내며, 다공층내 유체의 유동과 확산에 관련된 반응물의 속도와 내부 압력변화를 결정한다. 또한 $\epsilon \rightarrow 1$, $\kappa \rightarrow \infty$ 를 만족하는 일반 유동장내에서는 Navier-Stokes 식을 만족한다. B 는 body force vector 를 의미하며, 앞서 가정한 바와 같이 실제 계산에는 고려하지 않고, surface force 인 압력(p)과 점성력(τ) 만을 적용하였다. 연료전지 내에서 발생하는 온도변화 해석을 위해 에너지보존식(3)을 사용하였으며, 화학반응, 전류의 이동에 따른 열발생 및 열전달 현상에 관한 항을 함께 고려하였다.⁶

화학반응에 참여하는 반응물과 생성물의 mass fraction 변화에 대한 해석에는 화학종보존식(4)을 이용하였다. 마지막 항의 $\dot{\omega}_i$ 는 기체상의 i 번째 화학종의 생성속도를 의미한다. 특히, mass flux, $J_i(5)$ 항에는 반응물의 확산에 관련한 Stefan-Maxwell 식이 포함되어 전기화학반응에 의한 전산 해석을 수행하게 된다. 또한 다공성물질 내부에서의 확산현상에 대한 정확한 모델링을 위해 Bruggeman model(6)을 적용하였다.⁶

$$\frac{\partial}{\partial t}(\epsilon\rho h) + \nabla \cdot (\epsilon\rho U h) = \nabla \cdot q + \epsilon\tau$$

$$q = \lambda\nabla T + q_r + \sum_{i=1}^N J_i h_i \quad (3)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\epsilon\rho Y_i) + \nabla \cdot (\epsilon\rho U Y_i) = \nabla \cdot J_i + \dot{\omega}_i \quad (4)$$

$$J_i = \rho D_{i,eff} \nabla Y_i + \rho D_{i,eff}^T \frac{\nabla T}{T} + \frac{\rho Y_i}{M} D_{i,eff} \nabla M - M \sum_j D_{i,eff} \nabla Y_j - \nabla M \sum_j D_{i,eff} Y_j - \rho Y_j - \rho Y_j \sum_j D_{j,eff}^T \frac{\nabla T}{T} \quad (5)$$

$$D_{i,eff} = \epsilon^\tau D_i \quad (6)$$

연료전지 전산해석을 위한 격자모델 구성시에 전기화학반응이 일어나는 촉매층 및 전해질을 얇은 다공성재질로 구성하였으며, 이 다공성 재질 내부에서의 고체상과 유체상의 전기화학반응 및 전기전도로 인한 전기적 특성에 대한 해석을 위해 전류보존식(7)을 적용하였다.⁶ 또한 전기화학반응에 의한 상호교환전류(j_r)에는 Butler-Volmer 식(8)을 적용하였으며, α_A, α_C 는 상수로서 양극 및 음극반응에 대한 전자이동계수를 의미하고, C_i^β 는 near-wall 에서 몰농도를 의미한다.⁷

$$\nabla \cdot (-\sigma_s \nabla \phi_s) = -\nabla \cdot (-\sigma_r \nabla \phi_r) = j_r \quad (7)$$

$$j_r = \frac{j_0}{C_{i,r}^\beta} \left[\exp\left\{\frac{\alpha_A F}{RT}(\phi_s - \phi_r)\right\} - \exp\left\{\frac{-\alpha_C F}{RT}(\phi_s - \phi_r)\right\} \right] \prod_{i=1}^N C_i^\beta \quad (8)$$

2.4 해석 방법

지금까지 제시된 지배방정식과 물성 및 경계조건, 초기조건을 해석영역에 적용시켜 각 영역에서의 해석을 수행하였다. 연료전지의 anode 와 cathode 로 공급되는 연료의 공급량은 식(9)와 같이 연료전지로부터 생성되는 전력(P_e), 전압(V_c), 연료의 화학양론비를 통해 계산된다.⁷

계산과정은 SIMPLEC 알고리즘을 이용하여 운동량보존식에 의한 유동의 유속을 계산하고, 이를 통해 구해진 각종 유동 관련 변수를 이용하여 열전달, 화학반응, 전류에 대한 연속방정식을 순차적으로 해석하며 설정된 수렴기준을 만족할 때까지 계산을 반복하여 원하는 해석 변수에 대한 결과를 얻는다. 본 연구에 사용한 경계조건과 초기 작동 조건은 Table 2 에 명시하였다.^{6,9}

Air usage	$3.57 \times 10^{-7} \times \lambda \times \frac{P_e}{V_c} (kg/s)$	(9)
Hydrogen usage	$1.05 \times 10^{-8} \times \frac{P_e}{V_c} (kg/s)$	

Table 2 Operating conditions and electrochemical properties

Parameters	Values
Operation temperature (K)	333
Reaction area(cm ²)	2.364
Anode operation pressure (atm)	1
Cathode operation pressure (atm)	1
Universal gas constant (J/mol · K)	8.314
Anode stoichiometry	1.2
Cathode stoichiometry	1.5
Anode Mass Flow Rate (kg/s)	3.12757E-8
Cathode Mass Flow Rate (kg/s)	1.32922E-6
Anode gas relative humidity (%)	100
Cathode gas relative humidity (%)	100
Anode feed hydrogen mole fraction	0.73
Cathode feed oxygen mole fraction	0.235
Anode transfer coefficient (α_a)	0.5
Cathode transfer coefficient (α_c)	0.5
Anode exchange current density (A/m ³)	9.2272E8
Cathode exchange current density (A/m ³)	1.05E6
Faraday constant ,F	96487

정보에 대해 명확하게 제시되어 있지 않다. 따라서 모델 평가를 위한 실험 데이터를 선택하는 것이 쉽지 않은 문제이다. 본 논문에서는 구동 조건 중 상압 조건 하에서 구동하며, 연료전지 전산해석 타당성 평가 자료로 활용도가 높은 Ticianelli의 실험 데이터를 선정하였다.¹¹⁻¹²

Fig. 2 은 연료전지 해석결과와 Ticianelli 의 실험데이터와의 비교결과를 보여주고 있다. 여러 조건하 에서 전체적으로 실험값을 잘 반영하고 있으며, 투과도 10⁻¹¹ m², 기공도 0.6 과 250 μm 두께를 가지는 GDL 을 기본조건으로 사용하였다.

3. 결과 및 고찰

고분자전해질 연료전지의 기체확산층에 대한 특성 평가를 위해 기존 모델에 대한 타당성 평가를 수행하였고, 연료전지 성능에 영향을 미치는 기체확산층의 특성인 기체투과도, 기공도, 두께에 의한 영향에 대한 해석을 수행하였다.

3.1 기체투과도(Permeability)에 의한 영향

기체확산층은 다공성물질로 이루어져 있기 때문에 채널로부터 촉매층으로 반응 가스를 확산시켜주는 역할 및 생성된 전기를 집전체로 전도시키는 역할을 수행한다. 투과성이 클수록 연료가 확산될 수 있는 유로가 넓어지게 되어 반응기체 및 충분한 수증기를 촉매층에 전달할 수 있어 연료전지의 성능을 향상시킬 수 있다. 그러나 투과성이 과도하게 커질 경우 전기전도도의 감소 및 기체확산층의 구조를 유지할 수 없어 연료전지의 성능을 저해하는 요인으로 작용할 수 있다. 본 논문에서는 기공도 0.6, 두께 250 μm로 고정시킨 후, 기체확산층의 투과도를 10⁻¹¹~10⁻⁷ m²로 변화시키며 연료전지의 성능에 미치는 영향을 평가하였다.

Fig. 3 는 기체확산층의 투과도 변화에 따른 연료전지의 성능곡선을 보여주고 있다. 투과도가 증가할수록 물질전달 저항이 줄어들기 때문에 촉매층으로의 연료 공급이 증가되고 연료전지의 성능을 증가시킨다. 그러나 이러한 성능 증가는 농도분극 영역에서만 나타나게 된다.

Fig. 4 은 Cathode 측의 기체확산층 내의 동일한 위치에서 측정된 압력분포를 보여주고 있다. 물질 전달저항이 줄어들어 유동에 의한 내부의 압력도 감소함을 보여주고 있다.

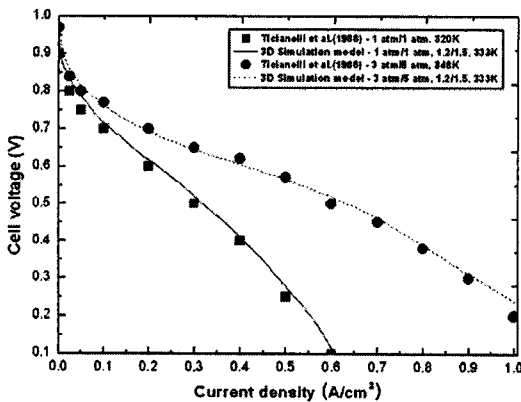


Fig. 2 Comparison of the predicted and measured cell polarization curves

2.5 타당성 평가

연료전지의 전산해석을 위해서는 사용된 모델의 타당성을 평가하기 위한 실험 모델과의 성능예측 비교가 필요하게 된다. 많은 문헌 및 자료들에서 실험 데이터를 제공하지만, 연료전지 시뮬레이션에 필요한 여러 구동 조건과 연료전지의 형상

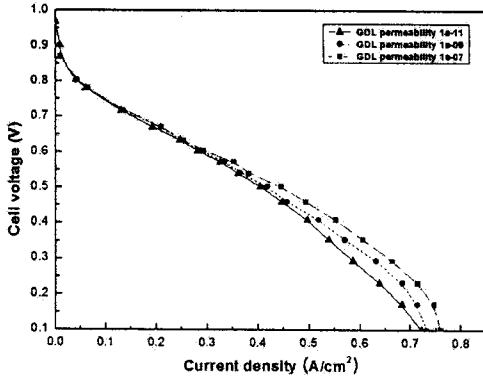


Fig. 3 Effect of GDL permeability on the cell performance

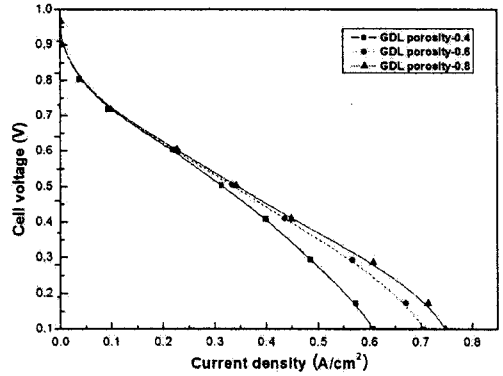


Fig. 5 Effect of GDL porosity on the cell performance

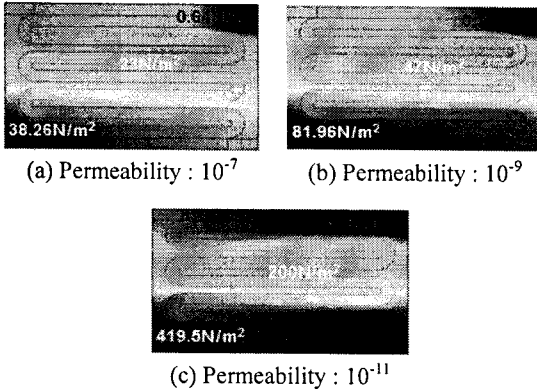


Fig. 4 Pressure distribution of GDL with permeability variation

3.2 기공도(Porosity)에 의한 영향

기체확산층의 기공도는 일정 범위 내에서 조절이 가능하며, 이러한 기공도의 제어를 통해 물질전달과 확산, 생성된 물의 배출 특성을 적절히 조절할 수 있으며 이러한 기공도의 조절은 연료전지의 성능에 커다란 영향을 미치게 된다. 따라서, 본 논문에서는 기체투과도 10^{-11} m^2 , 두께 $250 \mu\text{m}$ 로 고정시키고, 기체확산층의 기공도 변화에 따른 연료전지의 성능해석을 수행하였다.

Fig. 5 은 기공도 변화에 따른 연료전지의 성능곡선을 보여주고 있다. 기공도가 증가할수록 연료를 공급하는 유로 증가를 통한 물질전달저항이 감소하게 되어 연료전지의 성능향상이 이루어짐을 확인할 수 있다.

3.3 두께(Thickness)에 의한 영향

기체확산층의 두께에 의한 영향을 알아보기 위하여 투과도 10^{-11} m^2 , 기공도 0.6 으로 고정 후, $200\sim 500 \mu\text{m}$ 의 기체확산층 두께를 갖는 모델에 대한 비교해석을 수행하였다.

Fig. 6 은 기체확산층의 두께에 따른 연료전지의 성능곡선을 보여주고 있다. 기체확산층의 두께가 두꺼워질수록 물질전달 저항이 증가하는 요인으로 작용하여 반응층까지 확산되는 연료의 양을 감소시켜 연료전지의 성능을 저하시킨다. 이와는 반대로 두께가 얇아 지면서 확산되는 연료의 증가로 연료전지의 성능이 증가하게 되나, 두께가 너무 얇아지게 되면 기체확산층을 통해 확산영역이 감소하게 되어 극부적인 영역에서만 연료의 공급이 이루어지게 되며 이는 연료전지의 성능을 저하하는 요인으로 작용한다.

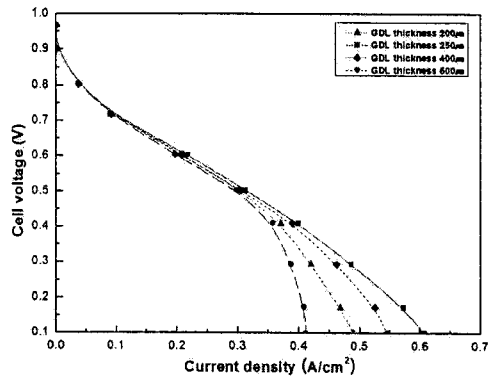


Fig. 6 Effect of GDL thickness on the cell performance

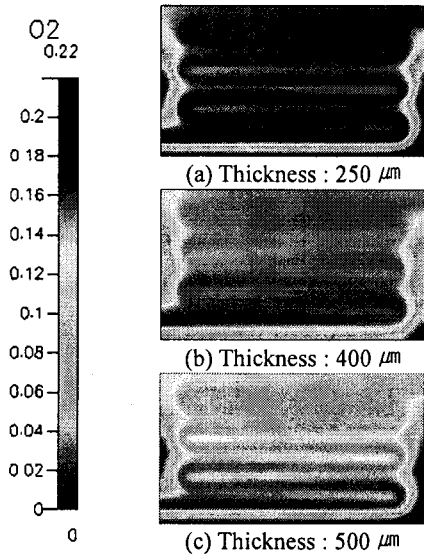


Fig. 7 Concentration distribution of O₂

Fig. 7 은 기체확산층과 촉매층 간의 계면상에서 두께에 따른 산소의 농도분포를 나타내고 있다. 두께가 250 μm 일 경우 입구의 농도 20%를 전면에 걸쳐 균일하게 유지하고 있으나, 두께가 두꺼워 질수록 농도는 감소하여 두께 500 μm 의 경우 출구의 농도는 14%까지 감소함을 확인할 수 있다.

4. 결론

본 연구에서는 고분자 전해질형 연료전지의 작동 특성 및 기체확산층의 성질에 따른 연료전지의 성능변화에 대해 상용 전산유체해석 코드인 CFD-ACE 를 이용하여 연료전지 전산해석을 수행하였다. 성능해석을 위한 고분자 전해질형 연료전지는 반응면적이 비교적 작은 단위전지를 이용하였으며, 물성치 및 작동조건은 실제 실험조건인 연료전지에 준하도록 모델링하였다. 또한 전산해석의 타당성 검토를 위해 Ticianelli 의 실험결과를 이용, 전산해석 결과와의 비교를 수행하였다. 특히, 기체확산층의 특성이 연료전지의 성능변화에 주는 영향을 알아보기 위해 기체확산층의 투과도, 기공도, 두께를 매개변수로 사용하여 전산해석을 수행하였다.

(1) 기체투과도가 성능변화에 따른 연료전지의 성능특성을 파악하였다. 기체투과도가 높을수록 물질전달저항이 줄어들어 기체확산층을 통한 연료의

확산이 증가되어 연료전지의 성능향상을 가져온다.

(2) 기공도가 성능변화에 미치는 영향을 알아보기 위해 0.4~0.8 의 기공도 변화를 통한 기체확산층의 비교를 수행하였다. 기공도 역시 투과도와 마찬가지로 증가할수록 성능이 향상되는 경향을 보이고 있다. 그러나 기체확산층의 투과도와 기공도가 지나치게 높을 경우 전기전도도가 감소하게 되어 연료전지의 성능감소로 이어질 수 있다.

(3) 기체확산층의 두께 변화에 따른 성능특성을 파악하였다. 기체확산층의 두께가 너무 얇을 경우 연료가 확산할 만한 충분한 유로를 제공하지 못해 연료전지의 성능저하를 야기시키며, 두께가 두꺼워질수록 물질전달저항이 증가하여 연료전지의 성능이 저하됨을 확인하였다. 200~500 μm 범위 내에서는 250 μm 두께의 기체확산층이 가장 좋은 성능특성을 보여주었다.

(4) 기체투과도, 기공도 및 두께와 관련된 기체확산층의 특성은 연료전지를 체결하는 압력에 따라 그 특성이 크게 변화하게 되며, 이는 연료전지의 성능변화에 커다란 요인으로 작용하게 된다. 따라서, 향후 연료전지 체결압 변화에 따른 기체확산층의 특성변화 및 연료전지 성능 변화에 대한 추가적인 연구가 필요할 것으로 판단된다.

후 기

본 연구는 산업자원부 성장동력, 중기거점/차세대신기술개발사업의 “마이크로 모바일 발전 기계 장치 개발”의 세부과제로 수행 중이며 이에 관계자 여러분께 감사드립니다. 또한 이 연구에 참여한 연구자는 “2 단계 BK21 사업”의 지원비를 받습니다.

참고문헌

1. Voss, H. and Huff, J., “Portable fuel cell power generator,” *Journal of Power source*, Vol. 65, No. 1-2, pp. 155-158, 1997.
2. Nguyen, P. T., Berning, T. and Djilali, N., “Computational model of a PEM fuel cell with serpentine gas flow channels.” *Journal of Power source*, Vol. 130, No. 1, pp. 149-157, 2004.
3. Xia, Z. T. and Chan, S. H., “Feasibility study of hydrogen generation from sodium borohydride

- solution for micro fuel cell applications.” Journal of power source, Vol. 152, pp. 46-49, 2005.
4. Wang, L., Husar, A., Zhou, T. and Liu, H., “A parametric study of PEM fuel cell performance,” Int. Journal of Hydrogen Energy, Vol. 28, No. 11, pp. 1263-1272, 2003.
 5. Lee, H. R., Kum, Y. T., Song, C. S. and Oh, K. H., “Finite Element Analysis of Heat and Moisture Transfer in Porous Materials,” Journal of Korean Society for Precision Engineering, Vol. 16, No.7, pp. 158-167, 1999.
 6. ESI US R&D Inc., “CFD-ACE+™ V2004 User Manual,” 2004
 7. Larminie, J., “Fuel Cell Systems Explained”, John Wiley & Sons Ltd., pp.45-66, 2003
 8. Woo, H. S. and Jung. Y. J., “Performance Simulation of Planar Solid Oxide Fuel Cells Characteristics: Computational Fluid Dynamics,” Journal of the Korean Electrochemical Society, Vol. 7, No. 2, pp.69-79, 2004
 9. Kim, Y. J., Lee, T. H., Oh, I. H., Hong, S. A., Kim, H. N. and Ha, H. Y., “Simulation of Direct Methanol Fuel Cells Employing Computational Fluid Dynamics(CFD),” Journal of the Korean Electrochemical Society, Vol. 6, No. 1, pp. 28-35, 2003.
 10. Dutta, S., Shimpalee, S. and Van Zee, J. W., “Numerical prediction of mass-exchange between cathode and anode channels in a PEM fuel cell,” Int. Journal of Heat and Mass Transfer, Vol. 44, No. 11, pp. 2029-2042, 2001.
 11. Springer, T. E., Zawodzinski, Z. A. and Gottesfeld, S., “Polymer electrolyte fuel cell model,” Journal of Electrochem. Soc., Vol. 138, No. 8, pp. 2334-2342, 1991.
 12. Ticianelli, E. A., Derouin, C. R., Redondo A. and Srinivasan S., “Methods to Advance Technology of Proton Exchange Membrane Fuel Cell,” Journal of Electrochem. Soc., Vol. 135, No. 9, pp. 2209-2214, 1988.