

Flexural wave를 이용한 고분자 전해질 연료전지 공기극 내에서의 플러딩 제거

김경록*, 한성호*, 안득균*, 최영돈**[†]

*고려대학교 기계공학과 대학원, **고려대학교 기계공학과

Removal of Flooding in a PEM Fuel Cell at Cathode by Flexural Wave

KYOUNGROCK KIM*, SEONGHO HAN*, DEUKKUEN AHN*, YOUNGDON CHOI**[†]

*Grad. School of Korea Univ., Anam-dong Seongbuk-gu, Seoul, 136-701, Korea

**School of Mechanical Engineering, Korea Univ., Anam-dong Seongbuk-gu, Seoul, 136-701, Korea

ABSTRACT

Water management is an important issue of PEM fuel cell operation. Water is the product of the electrochemical reactions inside fuel cell. If liquid water accumulation becomes excessive in a fuel cell, water columns will clog the gas flow channel. This condition is referred to as flooding. A number of researchers have examined the water removal methods in order to improve the performance. In this paper, a new water removal method that investigates the use of vibro-acoustic methods is presented. Piezo-actuators which are devices to generate the flexural wave are attached at the end of a cathode bipolar plate. Flexural wave is used to impart energy to resting droplets and thus cause movement of the droplets in the direction of the traveling wave.

KEY WORDS : PEMFC(고분자 전해질 연료전지), Cathode(공기극), Flooding(플러딩), Stoichiometry(당량비), Flexural wave(굽힘파), RH(상대 습도), CD(전류밀도)

Nomenclature

P : pressure, kPa
F : force, N
R : radius, m
 ψ : contact angle, °

Subscripts

gen : generating force
adh : adhesion
r : radiation
c : capillary
in : inlet
out : outlet
h : hydrostatic

[†]Corresponding author : ydchoi@korea.ac.kr

[접수일 : 2009.12.3 수정일 : 2010.2.3 게재확정일 : 2010.2.16]

1. 서 론

최근에 있어서 고분자 전해질 연료전지(PEMFC)는 효과적인 에너지 컨버터(energy converter)로 주목을 받아왔다. 지난 수십 년 동안 고분자 전해질 연료전지의 과학과 기술의 비약적인 성장에도 불구하고, 효과적인 물 관리(water management)는 만족할만한 수준에 도달하지 못하였다. 물 관리는 연료전지 작동에 있어서 가장 중요한 부분으로, 물은 주로 연료 전지 내에서 전기 화학반응에 의해 생성된다. 게다가 전기-삼투 항력에 의해 가습된 물의 일부가 전해질 막을 통해 수소극에서 공기극으로 운반된다¹⁾. 물은 또한 응축과 고분자 전해질 막(MEA)을 가로지르는 압력구배 때문에 공기극에서 수소극으로 확산할 수 있다.

이와 같은 물은 처음엔 작은 물방울 형태로 존재하다가 반응이 지속될수록 그 크기 또한 성장하여 촉매층(catalyst layer)으로의 가스 공급을 막게 되어 전지의 전압 강하를 일으키거나 불안정 상태로 만들고 최악의 경우 전기 발생이 중단될 것이다. 이러한 현상을 플러딩(flooding)이라고 하고 유동채널, 기체 확산 층(GDL) 그리고 촉매층과 같은 전지의 모든 부분에서 발생된다²⁾. 그 결과, 플러딩은 반응률 즉, FC 효율에 영향을 미친다.

초과된 물에 따른 잠재적인 문제들의 결과로 수많은 연구원들이 초과된 물을 제거할 수 있는 방법을 제안하였다. 이러한 방법 등은 수소극뿐만 아니라 공기극 내에서의 물 제거를 기반으로 하고 있다. 하나의 종래의 물 제거 방법은 기체 확산 층(GDL)에서의 모세관 현상을 이용하는 것이다³⁾. 기체 확산 층은 다공성 매질로 만들어지고 분리판과 공기극과 수소극 전극 사이에 위치하고 있다. 물은 모세관 현상에 의해서 이 물질 내의 기공을 통해 빨아들여진다.

또 다른 물 제거 방법은 당량비보다 훨씬 많은 양의 공기 또는 산소를 공기극을 통해 공급하는 것이다. 전형적으로, 산소 초과비는 2이다. 즉, 화학반응을 위해 산소를 필요한 양보다 2배 더 공급 하는 것이다. 당량비 보다 높았을 때의 효과는 전지의 공

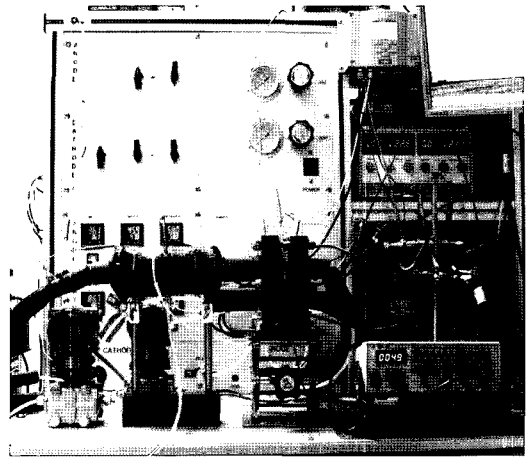


Fig. 1 Experimental apparatus of the fuel cell system.

기극에서 초과된 가스 유동이 초과된 물을 쓸어버릴 수 있기 때문이다⁴⁾.

마지막으로, 플러딩 현상을 예측할 수 있는 새로운 설계인자를 제시하였다. 무차원 변수 FN^* 는 물의 생성량과 공기극 출구 밖으로 배출된 양의 비로써 1보다 클 경우 플러딩 현상이 발생했다고 예측할 수 있다⁵⁾.

본 연구에서는 진동음향(vibro-acoustic) 분야⁶⁾에서 piezo-actuator를 통해 flexural wave를 발생시키는 연구를 연료전지에 적용시켜 독창적인 플러딩 제거 방법을 제시하였다. Flexural wave를 발생시킬 수 있는 piezo-actuator를 기존의 연료전지 분리판에 부착 시킨 후 주파수 변경 실험과 단위 전지 성능 비교 실험을 통해 flexural wave의 효과를 검증하였다.

2. 실 험

2.1 PEMFC 실험 장치

2.1.1 성능 실험 장치

고분자전해질 연료전지의 성능측정을 위하여 Fig. 1과 같은 단위전지 성능 실험 장치를 구성하였다. 단위전지 성능 실험 장치는 유량조절기, 가습기, 라인히터, 습도 센서로 구성되어있다.

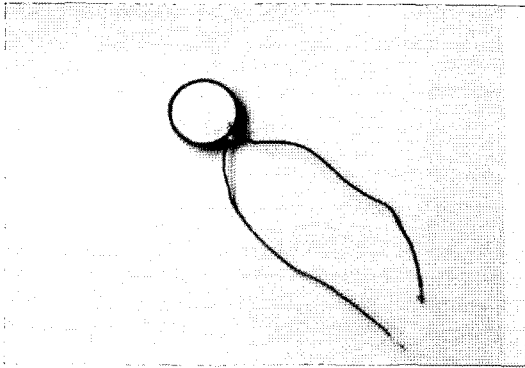


Fig. 2 Appearance of the piezo-actuator.

연료전지의 실험을 위해 99.9%의 수소와 공기를 유량조절기(mass flow controller - MFC)에 통과시켜 유량을 조절하였다. 유량이 제어된 MFC를 통과한 수소와 산소는 너무 건조할 경우 연료전지의 성능을 악화시킬 수 있으므로 본 연구에서는 MFC를 통과한 가스를 가습기에 통과시켜 반응가스의 상대 습도를 적절히 유지시켰다.

MFC와 가습기를 통과하여 유량과 상대 습도를 제어시킨 반응가스가 단위전지에 들어가기 전까지 적절한 온도를 유지할 수 있도록 라인히터를 단위전지 입구까지 설치하였다. 라인히터에 의해 일정한 온도가 유지되는 반응가스는 단위전지 내에서 열전달에 의해 온도가 변할 수 있으므로 end plate에 히터를 설치하여 단위전지 분리판 온도를 일정하게 유지하였다. 또한 압력을 측정하기 위해 공기극 입구부분에 압력계를 설치하였고, 입구와 출구 사이에 차압계를 설치하여 출구압력을 측정하였다.

2.1.2 측정 장치

단위전지에서 사용한 MEA는 25cm²의 활성면적을 갖는 상용 MEA로서 Gore에서 제작한 MEA를 사용하였다. 연료전지에서 생성된 전류와 전압을 조절하기 위해 ELP Tek사 300W DC-Loader를 사용하였다. 또한 반응가스 입출구의 압력을 측정하기 위해서 YOKOGAWA사의 Model- EJA110A 차압계, Model- EJA530A 압력계를 사용하였다. 입출구의 습도를 측정하기 위해 VAISALA사의 HMT 337

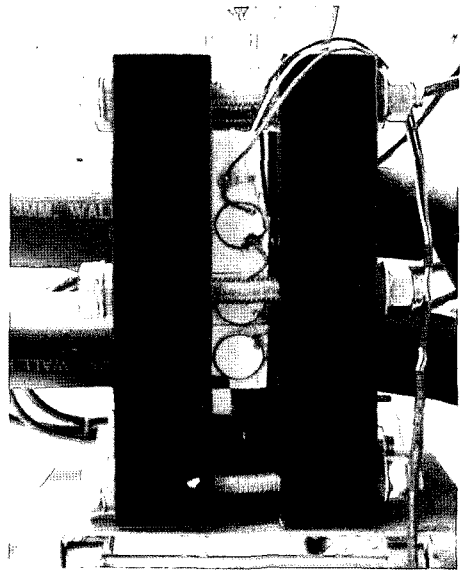


Fig. 3 Attached piezo-actuators at end of bipolar plate.

series 습도계를 사용하였다.

2.1.3 Piezo-actuator

본 연구에서 flexural wave를 통해 플러딩 현상을 제거하기 위해 piezo-actuator를 분리판에 부착시켰다. Piezo-actuator는 신호 발생기를 통해 전원과 주파수를 공급받아 압전 역 효과(inverse or indirect piezoelectric effect)에 의해서 전기적 에너지를 기계적 에너지로 변환시킨다. 이때 변환된 기계적 에너지가 분리판에 작용함으로써 flexural wave가 발생되어 파형 진행방향으로 채널 내 존재하는 물방울을 거동시켜 플러딩 현상을 제거할 수 있다.

Fig. 2는 piezo-actuator로써 2개의 PZT 세라믹과 그 사이에 베릴륨 동판으로 구성되어있다. Fig. 3은 본 연구에서 사용된 piezo-actuator가 부착된 연료전지로서 공기극 분리판 좌측에 반응가스의 유동방향으로 flexural wave가 발생될 수 있도록 부착하였다.

2.2 실험 조건

본 연구에서는 연료전지에서 발생하는 플러딩 현상을 효과적으로 제거할 수 있는 flexural wave를 제

Table 1 Experimental condition

Inlet Temperature [°C]	Stoichiometry	RH [%]	Frequency [Hz]
50	1.5	35	50
		50	50
		75	50
		90	10, 30, 50

시하기 위해 성능 측정 실험을 수행하였다. Flexural wave를 발생시킬 수 있는 piezo-actuator를 분리판에 부착시킨 후 고분자전해질 연료전지의 단위전지를 구성하여 그 성능을 비교하였다. 단위전지 성능을 비교하기 위해 다음과 같은 조건 변화를 통한 실험을 수행하였다.

- (1) Piezo-actuator 주파수 변화에 따른 성능 변화
 - (2) 상대 습도 변화에 따른 성능 변화
- 실험 세부 조건은 Table 1과 같다.

3. 관련 이론

3.1 물방울의 움직임에 관한 이론적 배경

전기화학반응에 의해 채널 내에 생성된 물방울을 제거하기 위해서는 물방울에 영향을 미칠 수 있는 힘이 필요하다. 그것을 작용 힘이라고 하고 F_{gen} 으로 표시한다. 또한 물방울과 분리판 표면 사이에 점착력(adhesion)이 존재하는데 이것을 F_{adh} 으로 표시하고 다음과 같이 나타낼 수 있다^{7,8)}.

$$F_{adh} = \sigma(1 + \cos \psi_0)w \tag{1}$$

여기서 σ 는 물방울의 표면 장력이고, w 는 물방울의 폭으로 $w = 2R\sin(\psi_0)$ 이다. ψ_0 은 접촉각(contact angle)이고, R 은 물방울의 반경이다. Fig. 4는 분리판 위에 존재하는 물방울을 나타낸다.

지금까지 분리판에 존재하는 물방울에 관한 이론적인 배경에 대해 설명하였다. 물방울을 움직이게 하기 위해서는 F_{gen} 이 필요한데 이 힘은 flexural wave에 의해서 생성된다.

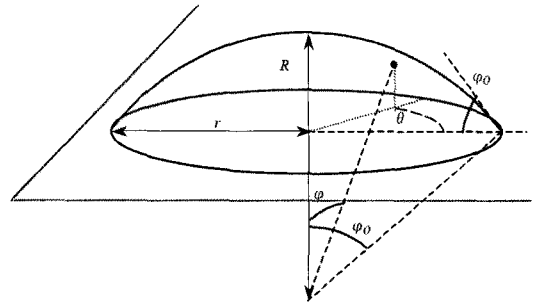


Fig. 4 Sketch of the droplet on a horizontal surface.

3.2 Flexural wave를 통한 물방울 제거

Flexural wave를 이용하여 평판 위의 물방울을 움직이게 하는 실험은 Scortesse et al.⁹⁾에 의해 연구되었다. Flexural wave는 분리판 위에 존재하는 물방울에 에너지를 전달하여 파형(wave) 진행 방향으로 물방울을 이동시킨다. 물방울에 작용하는 주요 힘은 다음과 같이 나타낼 수 있다¹⁰⁾.

복사압(radiation pressure)

$$P_r = \frac{1}{4} \rho w^2 u^2 \left(2 + \frac{B}{A} \right) \sin^2(kx) \tag{2}$$

모세압(capillary pressure)

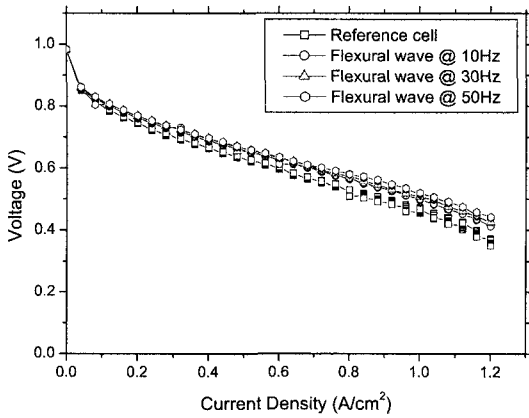
$$P_c = P_{in} - P_{out} = \sigma \left(\frac{1}{R_x} + \frac{1}{R_y} \right) \tag{3}$$

정수압(hydrostatic pressure)

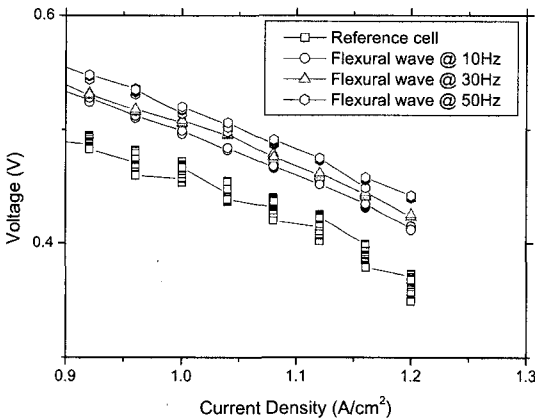
$$P_h = \rho g x \tag{4}$$

위의 3가지 힘 중에 물방울에 가장 큰 영향을 미치는 것은 복사압이다¹¹⁾. 복사압에서 $k(= \frac{2\pi}{\lambda})$ 는 파수이고, λ 는 파장, ρ 는 액체 밀도, w 는 주파수로 rad/s이다. 변수 B 와 A 는 비선형 효과 상수로 액체에서 $\frac{B}{A} = 5.2$ 의 값을 가진다. u 는 진동 진폭으로 meter 단위이고, x 는 flexural wave의 파형 방향이다.

복사압에 의한 물방울에 작용하는 힘 F_L 는 Fig. 4의 각도 θ 와 ψ 를 복사압에 관해 적분함으로써 계산되어지고 다음과 같다.



(a)



(b)

Fig. 5 Cell performances with different frequencies: (a) entire current density; (b) high current density.

$$F_x = \int_0^{\psi_0} \int_0^{2\pi} P_{or} \sin^2(kx) R^2 \sin^2\psi \cos\theta \, d\theta \, d\psi \quad (5)$$

P_{or} 은 압력 진폭으로 다음과 같이 나타내어진다.

$$P_{or} = \frac{1}{4} \rho w^2 u^2 \left(2 + \frac{B}{A} \right) \quad (6)$$

4. 결과 및 고찰

4.1 Piezo-actuator 주파수 변화에 따른 성능 변화

Piezo-actuator는 PZT 세라믹과 베릴륨 동판으

로 구성되어있다. PZT 세라믹은 압전체로써 전기적 에너지를 기계적 에너지로 변환시켜주는데 그것을 압전 역효과라고 한다. 따라서 신호발생기에서 전원과 주파수를 공급해줘서 piezo-actuator의 기계적 에너지로 flexural wave를 발생시킬 수 있다. 그러나 주파수 범위에는 한계가 있는데 2개의 PZT 세라믹 사이에 위치한 베릴륨 동판은 높은 주파수에서는 세라믹의 진동을 따라갈 수 없다. Piezo-actuator의 한계치 주파수는 약 50Hz이다. 그러므로 한계치 주파수 범위 내에서 주파수 변화를 통해 실험을 하였다.

연료전지의 반응가스 온도는 50°C 그리고 상대 습도는 90%의 조건에서 주파수를 10, 30 그리고 50Hz로 변화시킨 후 성능 변화를 비교하였다. Fig. 5는 주파수 변화에 따른 성능 곡선을 나타낸다. Piezo-actuator를 작동시켰을 경우 일반적인 연료전지의 성능과 비교해 볼 때 flexural wave에 의해 성능이 16~20% 향상되는 것을 확인할 수 있다. 특히 고 전류밀도에서의 성능 차이가 가장 큰 데 이것은 반응이 지속될수록 생성된 droplet이 flexural wave에 의해 지속적으로 제거가 되었기 때문이다. Fig. 5(b)는 고 전류밀도에서 일반적인 연료전지의 경우 cell 전압의 변화가 심한 것을 나타내지만 piezo-actuator를 부착한 경우 고 전류밀도에서도 안정적으로 cell 전압이 유지되는 것을 나타낸다.

주파수 변화에 의한 성능은 50Hz에서 20% 성능 향상으로 가장 효과적이다.

4.2 상대 습도 변화에 따른 성능 변화

4.1장에서 piezo-actuator의 주파수 변화에 따른 성능 비교를 통해 50Hz가 최적 주파수임을 확인하였다. 따라서 연료전지 성능에 있어서 중요한 인자 중에 하나인 상대 습도를 35%, 50%, 75% 그리고 90%로 변화시킨 후 신호발생기로 50Hz의 주파수를 발생시켜 성능 비교를 실시하였다. 반응 가스 입구온도는 50°C로 유지하였고 CD 1.6까지 1A씩 3분 동안 연료전지 성능 실험을 하였다.

Fig. 6은 상대 습도 변화에 따른 성능 곡선을 나타낸다. 상대 습도가 증가할수록 연료전지 성능이

Flexural wave를 이용한 고분자 전해질 연료전지 공기극 내에서의 플러딩 제거

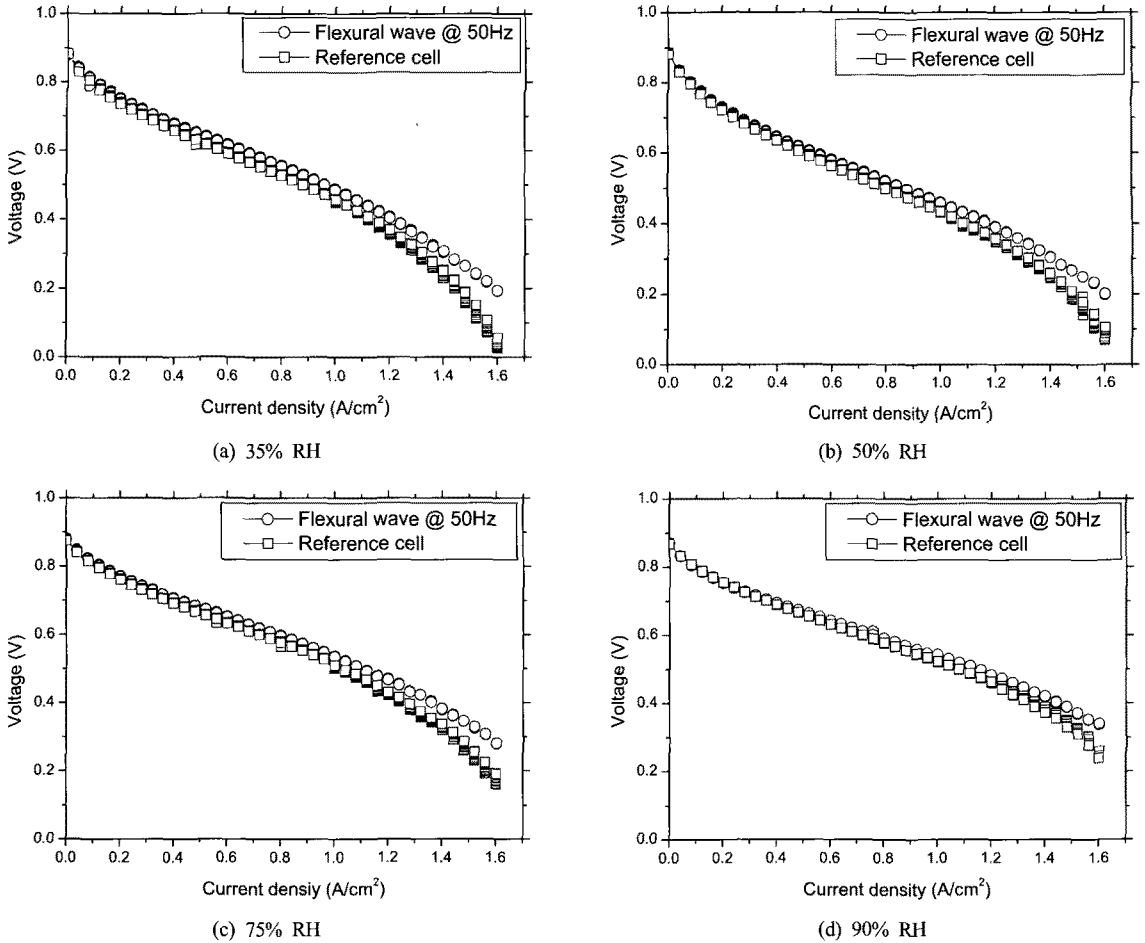


Fig. 6 Effect of flexural wave on cell performances with different RH.

향상되는 것을 확인 할 수 있는데 이는 상대 습도가 연료전지 성능변화에 중요한 변수임을 나타낸다. 특히, 모든 상대 습도에서 piezo-actuator를 작동시켰을 때 성능이 CD 1.6에서 18%~25%정도 높게 나타나는 것과 고 전류밀도에서 안정적인 cell 전압이 출력되는 것을 확인할 수 있다. 플러딩 현상은 반응가스의 유동을 차단시켜 cell 출력 전압을 불안정하게 만들고 더 나아가 연료전지의 구동을 멈추게 한다. 이러한 플러딩 현상을 flexural wave로 인해 제거하였기에 때문에 고 전류밀도에서도 안정적으로 cell 전압이 출력된다.

상대 습도 35%의 경우 CD 1.6에서 일반적인 연료전지의 성능이 플러딩 현상에 의해 급격히 저하되

어 작동 불능 상태가 된 것을 확인 할 수 있다. 그렇지만 piezo-actuator가 부착된 연료전지는 flexural wave로 인해 플러딩 현상이 제거되어 안정적인 cell 전압이 출력된다. 그 결과 연료전지의 성능차이가 다른 상대습도보다 가장 큰 25%를 나타낸다.

상대 습도 90%의 경우 일반적인 연료전지가 CD 1.6에서도 상대적으로 가장 높은 cell 전압을 유지하기 때문에 piezo-actuator가 부착된 연료전지보다 18% 정도 높은 성능을 나타낸다. 하지만 더 높은 전류밀도에서 플러딩 현상이 발생할 경우 두 연료전지의 성능 차이는 증가할 것이다. 즉, flexural wave가 지속적으로 채널 내 물방울을 거동시켜 플러딩 현상을 제거하여 고 전류밀도에서도 높은 출력밀도를 유지시킨다.

5. 결 론

본 연구에서는 플러딩 현상을 제거하기 위한 방법으로 진동 음향 분야를 연료전지에 적용시켰다. Piezo-actuator를 연료전지 분리판에 부착시키고 신호발생기를 통해 전원과 주파수를 공급하여 압전 역효과를 이용 flexural wave를 발생시켰다.

본 연구의 결론은 다음과 같다.

- 1) 고분자 전해질 연료전지의 성능 실험 결과 상대 습도가 높을수록 연료전지 성능이 향상된다. 그렇지만 고 전류밀도에서는 플러딩 현상으로 인해 cell 전압이 안정적으로 출력되지 못하고 성능이 급격히 저하 되는 것을 확인하였다.
- 2) 주파수 변화를 통한 성능 실험을 통해 piezo-actuator의 한계치 주파수인 50Hz에서 성능이 20%로 가장 크게 향상되는 것을 확인하였다.
- 3) 최적 주파수인 50Hz로 piezo-actuator를 작동 시켜 상대 습도 변화를 통한 성능 실험을 수행한 결과 flexural wave로 인해 플러딩 현상이 제거되어 연료전지의 성능이 급격히 저하되는 것을 방지할 수 있었다. 그래서 일반적인 연료전지 보다 고 전류밀도에서 높은 출력밀도를 가질 수 있고 안정적인 cell 전압을 유지할 수 있었다.

후 기

본 과제는 한국과학기술재단 연구과제(R01-2008-000-12299-0)로 수행된 것이며 이에 감사한다.

참 고 문 헌

- 1) A. N. Trung and W. K. Mark : "A Liquid Water Management Strategy for PEM Fuel Cell Stacks", J. of Power Sources, Vol. 114, 2003, pp. 70-79.
- 2) J. P. Owejan, T. A. Trabold, D. L. Jacobson, M. Arif and S. G. Kandlikar : "Effect of Flow Field and Diffusion Layer Properties on Water Accumulation in a PEM Fuel Cell", Int. J. of Hydrogen Energy, Vol. 32, 2007, pp. 4489-4502.
- 3) U. Pasaogullari and C. Y. Wang : "Liquid Water Transport in Gas Diffusion Layer of Polymer Electrolyte Fuel Cells", J. Electrochem. Soc., Vol. 151, 2004, pp. 399-406.
- 4) K. Tuber, D. Pocza and C. Hebling : "Visualization of Water Buildup in the Cathode of a Transparent PEM Fuel Cell", J. of Power Sources, Vol. 124, 2003, pp. 403-414.
- 5) D. K. Ahn, S. H. Han, K. R. Kim and Y. D. Choi : "Experimental Analysis for Variation of Pressure Difference on Flooding in PEM Fuel Cell at Exit of Cathode Channel", Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society, Vol. 20, No. 5, 2009, pp. 390-396.
- 6) V. Palan, W. S. Shepard Jr. and K. A. Williams : "Removal of Excess Product Water in a PEM Fuel Cell Stack by Vibrational and Acoustical Methods", J. of Power Sources, Vol. 161, 2006, pp. 1116-1125.
- 7) J. Israelachvili, "Intermolecular and Surface Forces", Academic Press, New York, 1991, pp. 89-92.
- 8) A. Torkkeli, J. Saarihahti and A. Haara : "Electrostatic Transportation of Water Droplets on Superhydrophobic Surfaces", 14th IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems, 2001, pp. 475-478.
- 9) J. Scortesse, J. F. Manceau and F. Bastien : "Interaction Between A Liquid Layer and Vibrating Plates: Application to the Displacement of Liquid Droplets", J. Sound Vib., Vol. 254, 2002, pp. 927-938.
- 10) S. Alzuaga, J. F. Manceau, S. Ballandras and F. Bastien : "Displacement of Droplets on a Surface Using Ultrasonic Vibration", World Congress on Ultrasonics Paris, 2003, pp. 951-954.
- 11) L. V. King : "On the Acoustic Radiation Pressure on Spheres", Proc. of the Royal Society of London, Vol. 147, 1934, pp. 212-241.