

<학술논문>

DOI <http://dx.doi.org/10.3795/KSME-B.2013.37.11.1009>

ISSN 1226-4881(Print)
2288-5234(Online)

연료전지용 분리판의 리브 높이 변화에 따른 응답성 변화에 관한 실험적 연구

남기훈* · 윤성호* · 한성호** · 최남현*** · 최영돈*†

* 고려대학교 기계공학과, ** 효성중공업연구소 연료전지팀, *** 엘지전자(주)

Experimental Study on Transient Response According to Variation of Rib Height at Fuel Cell Plate

Ki Hoon Nam*, Sung Ho Yun*, Sung Ho Han**, Nam Hyeon Choi***
and Young Don Choi*†

* Dept. of Mechanical Engineering, Korea Univ.,

** LG Electronics Inc.,

*** Power & Industrial Systems R&D Center, Hyosung Corporation.

(Received May 20, 2013 ; Revised July 23, 2013 ; Accepted August 11, 2013)

Key Words: Transient Response(응답성), Variation of Rib(리브 변화), GDL(기체확산층), Clamping Pressure(체결압)

초록: 본 연구는 연료전지 공기극에서 리브의 높이를 변화시켰을 때, 이에 따른 응답성과 성능의 변화를 평가하였다. 전류 밀도의 순간적인 변화에 따른 과도 상태의 전압 신호를 분석하기 위해 당량비와 상대습도가 일정한 상태에서 연료전지의 주 작동 전압 구간인 0.5V~0.7V의 범위에서 전류 밀도를 0.8A/cm²에서 1.0A/cm²으로 변화를 주어 응답성을 분석하였고, 체결압력을 1.5MPa, 2.0MPa로 다르게 했을 경우 언더슈트의 정도를 확인하였다. 100µm의 리브 높이를 변화시킨 채널의 경우, 1.5MPa의 체결압에서 기존의 경우에 비해 빠르게 안정적인 상태에 도달했으며 최대 언더슈트 전압값이 낮게 측정되었다. 하지만 성능은 접촉 저항의 증가로 인해 기존의 분리판에 비해 낮은 값을 나타냈다.

Abstract: In the present study, using a variation of rib height, the transient response and the performance are investigated. The cell voltage is acquired according to the current density change(0.8A/cm² to 1.0A/cm²) under same stoichiometry and relative humidity. The different level of undershoots appeared at the different clamping pressure(1.5MPa and 2.0MPa) and different rib height. At 1.5MPa clamping pressure, rib manufactured cut at 100µm height goes to steady state faster than reference plate and has lower maximum undershoot voltage. But performance is lower than reference plate due to increasing contact resistance.

- 기호설명 -

1. 서론

- D : 확산도 [m²/s]
- δ : 기체확산층 두께 [m]
- τ : 기체확산층 통과 시간 [s]

하첨자

- g : 가스(gas)
- GDL : 기체확산층

연료전지 시스템은 기존의 에너지 변환 방식에 비하여 고효율, 무공해, 무소음의 청정 에너지원이며, 연료로 천연가스, 타프타, 메탄올 등의 다양한 연료를 사용하고, 그 구성요소들이 모듈화되어 가공과 설치가 용이하여 다른 청정 에너지원과 비교하여 활용 범위가 넓은 특징을 가지고 있다.

연료전지는 전기 화학 반응에 의해 연료의 화학 에너지를 전기 에너지로 직접 변화시키는 고효율의 발전 시스템으로 그 전해질의 종류에 따라 고분자 전해질형, 인산형, 용융탄산염, 고체산

† Corresponding Author, ydchoi@korea.ac.kr

© 2013 The Korean Society of Mechanical Engineers

화물형, 알칼리형 등의 다섯 가지로 구분된다. 이 중에 고분자전해질형 연료전지는 현재 자동차의 동력원으로 쓰이는 내연기관을 대체할 수 있는 기술로 각광 받고 있다. 이를 위해 여러 가지 개선해야 할 문제들 중 특히 출력 변화에 따른 응답 특성에 관한 연구가 많이 진행되어져 왔다. Kim 등⁽¹⁾은 당량비의 변화에 따른 응답 특성에 관해 실험적 연구를 수행하였다. 이를 토대로 Simpalee 등^(2,3)은 3차원 모델을 개발하여 고정된 당량비(Stoichiometry) 조건에서 전압을 변화 시킬 때 전류 밀도의 오버슈트(Overshoot) 및 언더슈트(Undershoot) 현상을 예측하였다. 또한 Qu 등^(4,5)에 의해 초기에 과급 유량 공급 시 동적 변화에 따른 언더슈트 현상을 줄일 수 있고 습도가 높을수록 언더슈트 현상이 작지만 정상 상태로 복귀되는 시간이 오래 걸린다는 연구를 보고되었다. 그리고 Methkar 등⁽⁶⁾은 Multiple input-multiple output(MIMO) 시스템을 구축하여 시스템 온도와 당량비를 빠르게 컨트롤 해주어 언더슈트 현상을 줄여주는 실험 및 시뮬레이션 연구를 수행하였다.

이 밖에도 GDL(Gas Diffusion Layer)의 투과도가 고분자전해질형 연료전지 성능에 영향을 주는 요소로 연구되어졌다. GDL의 투과도에 가장 큰 영향을 주는 요소는 연료전지의 체결압력이다. 체결압이 증가 할수록 GDL의 두께가 변화하는데, 두께가 얇아질수록 전기적 특성은 좋아지나 응답성을 좌우하는 투과도는 낮아지고 리브와 유로가 만나는 부분에서 과전압이 높게 발생한다.^(7,8) 또한 리브 측과 유로 측의 불균형한 압력으로 인해 GDL의 투과도가 불균형하게 분포해 성능 저하가 일어난다는 연구가 보고되었다.⁽⁹⁻¹¹⁾

이에 본 연구에서는 리브 높이 변화를 주어 연료전지 단위셀이 고압으로 체결됨에 따라 압축되는 양을 줄이고 불균일한 투과도를 완화하여 언더슈트 현상을 줄이고 정상 상태로 빠르게 수렴시키는 연구를 수행하였다.

2. 실험장치

본 연구에서는 Fig. 1에서와 같이 연료전지 테스트 스테이션에서 진행되었다. 고순도 수소(99.999%) 및 고순도 공기를 공급하였으며, 버블형(Bubbling Type) 가습기를 사용하여 습도를 조절하였다. 전류와 전압을 조절 및 측정을 하기

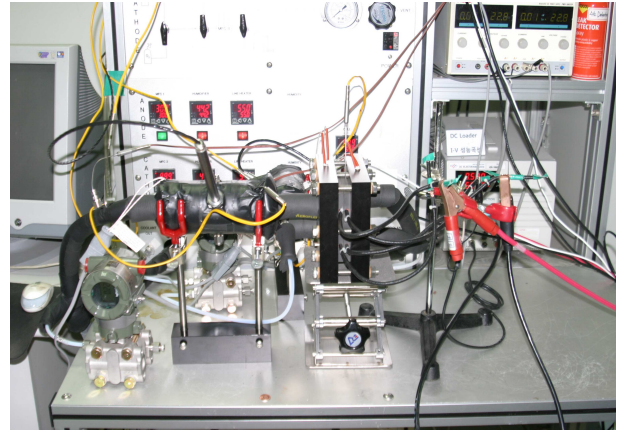


Fig. 1 Experimental apparatus of the FC system

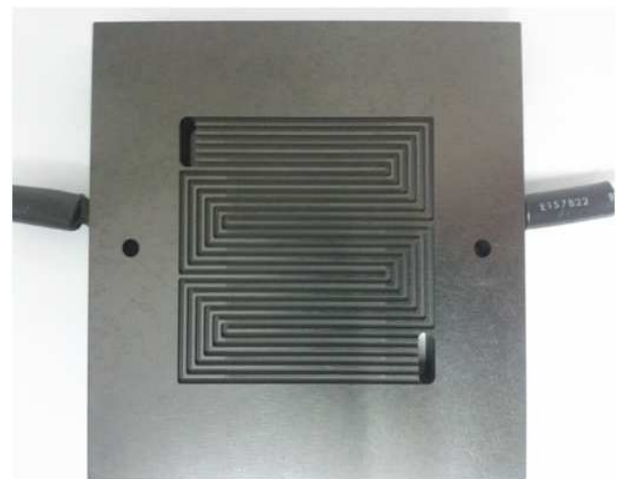


Fig. 2 Fuel cell bipolar plate using a variation of rib height at Cathode

위해서 300W DC-Loader를 사용하였다. 그리고 연료극과 공기극의 유량을 조절하기 위해 1L/5L의 질량유량계를 사용하였다. 공기극 입구와 출구의 상대 습도를 측정하기 위해서 VAISALA사의 HMT330 series를 사용하였다. 연료전지 단위셀은 Gore사의 PRIMEA 57 MEA와 SIGRCET사의 GDL 35BC를 결합한 25cm²의 활성화 면적을 갖는 고분자 전해질 막(MEA)를 사용하였다.

3. 실험방법

본 연구에서 Fig. 2와 같이 흑연 분리판을 사용하였고 채널의 너비 1mm, 길이 0.7mm, 리브의 너비 0.9mm의 굴절형(Serpentine Type)으로 설계하였다. 리브 높이 변화를 주기위해 공기극 분리판에 Fig. 3와 같이 직선 구간 리브를 100 μ m 단차를 주어 가공하여 실험을 수행하였다. 실험 조건은 상온 25 °C, 상대 습도 40%, 공기극에는 당

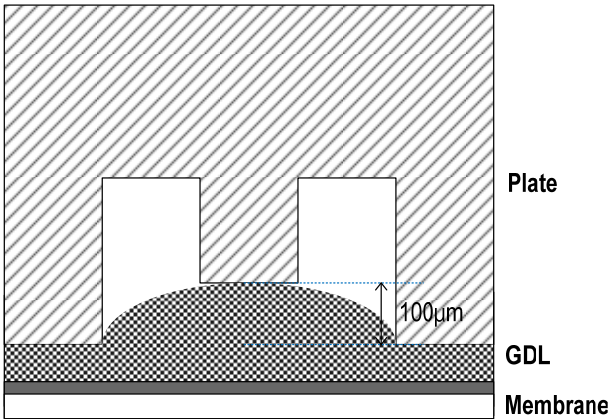


Fig. 3 GDL deformation applying the compression pressure at the bipolar plate

량비 1.5, 수소극에는 당량비 1.2 이다.

일반적인 연료전지 스택의 체결압은 1.5MPa-2.0MPa의 범위에서 체결이 이루어진다.⁽¹²⁾ 체결압은 클수록 연료전지의 성능은 향상 되지만 GDL의 내구성은 낮아진다.^(13,14) 그러므로 본 연구에서는 실험 조건을 일정하게 유지하고 체결압만을 변화를 주어 첫 번째 실험에서 1.5MPa의 체결압, 두 번째 실험에서 2.0MPa의 체결압 조건에서 실험을 실시하였다. 또한 전류 밀도의 순간적인 변화에 따른 과도 상태의 전압 신호를 분석하기 위해 연료전지의 주 작동 전압 구간인 0.5V~0.7V의 범위에서 전류 밀도를 0.8A/cm²에서 1.0A/cm²으로 변화를 주어 응답성을 분석하였다.

4. 실험결과 및 고찰

4.1 체결압 1.5MPa의 실험 결과

Fig. 4는 체결압 1.5Mpa 경우 0.8A/cm²에서 1.0A/cm²으로 순간적인 전류 밀도 변화에 대한 전압값 변화에 대한 그래프이다. 기존의 분리판과 리브의 변화를 준 분리판 모두 전압 값이 전류 밀도 변화 후 정상 상태에 이른 약 25초 이후에 비해 값이 떨어진 언더슈트(Undershoot) 현상이 나타나고 있다. 이는 기존 연구에 보고되었듯이 실제 2상 유동에 의한 산소의 느린 물질 전달 속도 및 확산 속도에 의한 가스 공급 저하, 불균일한 산소 분포, 원활하지 않은 물 제거에 의한 현상 때문에 일어난다. 채널에서의 물질전달 속도의 경우 GDL의 특성과 체결방법, 그리고 당량비와 온도등에 따라서 달라지게 되며, 본 연구에서는 나머지 변수를 고정시킨 뒤 체결압을 변화시켜가며 GDL 변형을 고려하여 채널 리브 깊이

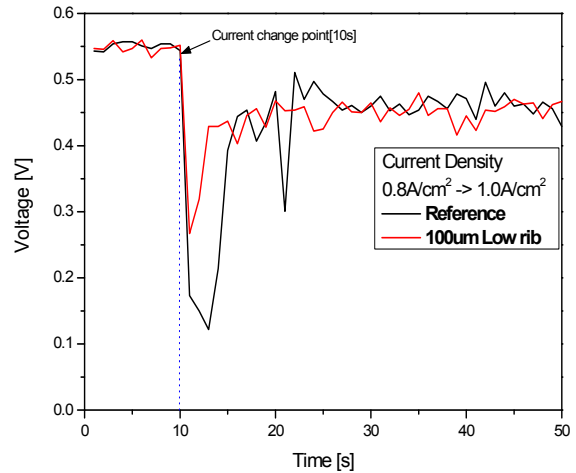


Fig. 4 The voltage response when the current density changed 0.8A/cm² to 1.0A/cm² under 1.5MPa clamping pressure

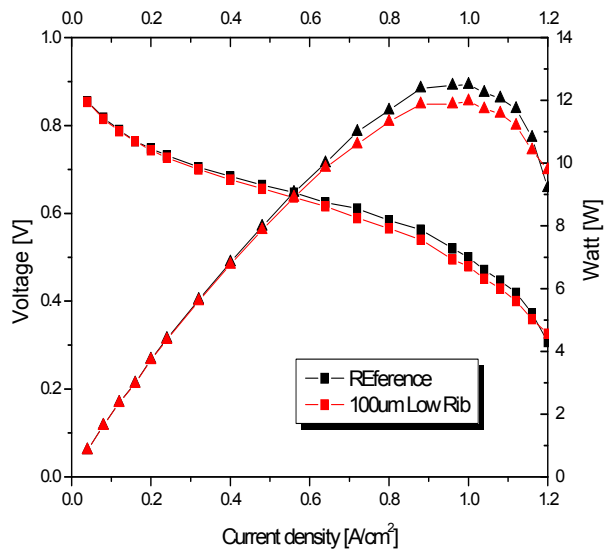


Fig. 5 I-V and I-P performance curve for unit cell under 1.5MPa clamping pressure

따른 채널에서의 물질전달 특성을 출력되는 전압을 살펴보았다. 그 밖에 불균일한 산소의 분포도와 플러딩(Flooding)의 경우 채널구조가 주로 영향을 미친다.

일반적으로 가스가 기체확산층을 통과하는 시간은

$$\tau_k = -\frac{\delta_{GDL}^2}{D_g^{eff}} \quad (1)$$

로 간단히 계산할 수 있으며, δ_{GDL} 은 약 0.3mm, 일반적인 다공성 GDL에서는 D_g^{eff} 는 10m²/s 이므로 τ_k 는 약 0.01초의 오더를 가진다.⁽¹⁵⁾ 즉, 가스의 확산 시간의 제한 때문에 순간

적인 부하 변화에 대해 연료전지의 성능이 저하되는 언더슈트 현상이 나타난다. Fig. 4에서 기존의 분리판은 10초에서 16초사이로 약 6초, 리브 높이의 변화를 준 분리판은 10초에서 12초 사이로 약 2초의 언더슈트 현상이 관찰된다. 이는 이론적으로 가스가 기체확산층을 통과하는데 0.01초의 시간이 걸리지만 실제로는 채널 전체 영역에서 가스의 분포가 균일하지 않고, 순간적인 전류밀도 변화에 맞는 당량비에 공급이 채널 입구에서 출구까지 공급되기 까지 시간이 걸리기 때문이다. 또한 과도 응답에 따라 생성된 물이 GDL층을 막아 언더슈트 후 정상상태에 도달하기 까지 시간이 1초 이상이 걸린다고 예상 할 수 있다. 하지만 위의 결과를 통해 리브의 높이의 변화를 주었을 경우 기존의 분리판에 비해 약 4초 일찍 정상상태에 이르는 것을 볼 수 있다. 또한 리브의 변화를 준 경우 언더슈트로 인해 최하점인 0.26V까지 저하되었다가 빠르게 회복하는 반면 기존의 분리판은 최하점인 0.11V까지 저하되었다가 회복하는 모습을 보이고 있다. 이는 리브의 높이 변화에 의해 GDL 층의 체결압이 작아져 투과도가 증가하였기 때문이다. 낮아진 투과도는 식 (1)에서와 같이 GDL층에서 전류변화에 따른 가스의 전달을 빠르게 하여 기존 분리판에 비해 정상 상태에 일찍 도달시키고 언더슈트의 최하점도 증가시킨다고 해석 할 수 있다.

Fig. 5는 기존의 분리판과 리브 높이 변화를 준 분리판의 성능곡선을 나타낸 그래프이다. 기존의 분리판에 비해 리브의 높이 변화를 준 분리판의 경우 약 4% 성능이 하락한 것을 볼 수 있다. 이는 리브의 높이에 변화를 준 경우 GDL의 체결압이 작아 응답성은 향상 되지만 리브 부분의 접촉저항이 증가하여 성능이 하락한다고 예상 할 수 있다.

4.2 체결압 2.0MPa의 실험 결과

Fig. 6은 체결압 2.0MPa 경우 0.8A/cm²에서 1.0A/cm² 으로 순간적인 전류 밀도 변화에 대한 전압값 변화에 대한 그래프이다. 기존의 분리판과 리브의 높이변화를 준 분리판 모두 10초에서 19초 사이에 언더슈트 현상이 일어나 밀도 변화 후 9초 후 정상상태에 이르는 것을 볼 수 있다. Fig. 4와 달리 리브의 높이 변화를 준 경우 언더슈트가 일어나는 정도가 기존에 비해 적지만 정상 상태에 이르기 까지는 거의 비슷한 시간이

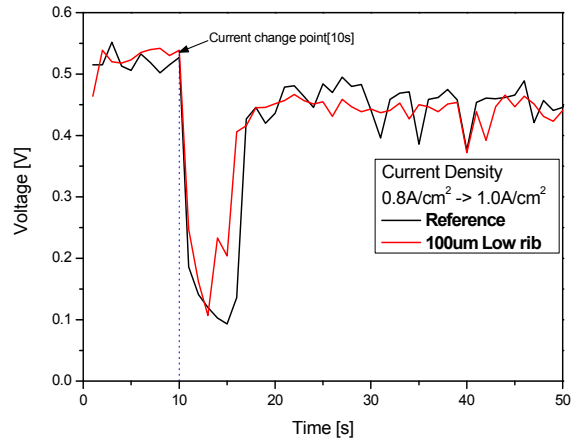


Fig. 6 The voltage response when the current density changed 0.8A/cm² to 1.0A/cm² under 2.0MPa clamping

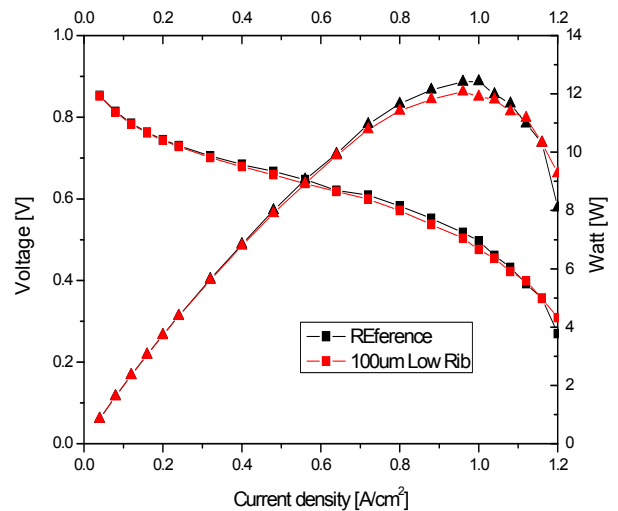


Fig. 7 I-V and I-P performance curve for unit cell under 2.0MPa clamping pressure

걸리는 것을 볼 수 있다. 이는 리브의 높이 변화로 인해 증가된 GDL의 투과도가 높은 체결압에 의해 압축되어 기존의 분리판의 GDL과 비슷한 투과도를 갖게 되었기 때문이라 예상 할 수 있다. 하지만 리브의 변화를 준 경우 언더슈트로 인해 빠르게 최하점인 0.11V까지 저하되었다가 회복하는 반면 기존의 분리판은 느리게 최하점인 0.09V까지 저하되었다가 회복하는 모습을 보이고 있다. 이는 높은 체결압에 의해 투과도가 증가하였지만 기존 분리판에 비해서는 낮은 투과도를 가지고 있다고 예상할 수 있다. Fig. 7은 기존의 분리판과 리브 높이 변화를 준 분리판의 성능곡선을 나타낸 그래프이다. Fig. 5와 같이 기존의 분리판에 비해 리브의 높이 변화를 준 분리판의 경우 약 4% 성능이 하락한 것을 볼 수 있다. 하

지만 체결압 1.5MPa일 때와 달리 0.6V-0.9V의 높은 전류에서는 기존의 분리판과 1% 이내로 거의 비슷한 성능을 보이고 있고 0.3V-0.4V에 저전압 고출력 부분에서는 오히려 성능이 향상된 모습을 보이고 있다.

5. 결 론

본 연구에서는 분리판의 리브 높이 변화를 준 분리판과 기존의 분리판을 체결압의 변화에 따라 응답성 성능을 실험 후 비교 분석하여 수행한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 순간적인 전류밀도 변화 실험 결과, 체결압 1.5MPa 경우 기존의 분리판에 비해 약 4초 일찍 정상 상태에 이르고 언더슈트로 인한 최저 전압값도 기존 분리판의 0.11V 보다 향상된 0.26V를 보였다. 이는 언더슈트가 적게 일어나 MEA의 수명에 영향을 준다고 예상 할 수 있다.

(2) 성능 그래프 분석 결과 GDL의 접촉저항 증가에 의해 약 4% 성능 저하가 일어나는 결과를 나타내었다. 체결압이 증가된 2.0MPa의 경우 리브 높이 변화의 효과가 줄어들어 언더슈트로 인한 최저 전압값이 조금 증가 하였지만 기존의 분리판과 비슷하게 정상 상태에 도달하는 것을 확인 하였다.

후 기

본 연구는 2012년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제(No. 20124010203250)입니다.

참고문헌

- (1) Kim, S.H., Shimpalee, S. and Van Zee, J.W., 2004, "The Effect of Stoichiometry on Dynamic Behavior of a Proton Exchange Membrane Fuel Cell During Load Change," *Journal of Power Sources*, Vol. 135, pp. 110~121.
- (2) Shimpalee, S., Lee, W.K., Van Zee, J.W. and Naseri Neshat, H., 2006, "Predicting the Transient Response of a Serpentine Flow-Field PEMFC-1. Excess to Normal Fuel and Air," *Journal of Power Sources*, Vol. 156, pp. 355~368.
- (3) Shimpalee, S., Lee, W.K., Van Zee, J.W. and Naseri Neshat, H., 2006, "Predicting the Transient Response of a Serpentine Flow-Field PEMFC- 2. Normal to Minimal Fuel and Air," *Journal of Power Sources*, Vol. 156, pp. 369~374.
- (4) Qu, S., Li, X, Hou, M., Shao, Z. and Yi, B., 2008, "The Effect of Air Stoichiometry Change on the Dynamic Behavior of a Proton Exchange Membrane Fuel Cell," *Journal of Power Sources*, Vol. 185, pp. 302~310.
- (5) Qu, S., Li, X, Ke, C., Shao, Z. and Yi, B., 2010, "Experimental and Modeling Study on Water Dynamic Transport of the Proton Exchange Membrane Fuel Cell Under Transient Air Flow and Load Change," *Journal of Power Sources*, Vol. 195, pp. 6623~6636.
- (6) Methekar, R.N., Prasad, V. and Gudi, R., 2007, "Dynamic Analysis and Linear Control Strategies for Proton Exchange Membrane Fuel Cell Using a Distributed Parameter Model," *Journal of Power Sources*, Vol. 165, pp. 152~170.
- (7) Nitta, I., Hottinen, T. and Mikkola, M., 2007, "Inhomogeneous Compression of PEMFC Gas Diffusion Layer Part I. Experimental," *Journal of Power Sources*, Vol. 171, pp. 26~36.
- (8) Nitta, I., Karvonen, S., Hottinen, O. and Mikkola, M., 2008, Modelling the Effect of Inhomogeneous Compression of GDL on Local Transport Phenomena in a PEM Fuel Cell, *Fuel Cells*, Vol. 8, pp. 410-421.
- (9) Chi, P.H., Chan, S.H., Weng, F.B., Su, A., Sui, P.C. and Djilali, N., 2010, "On the Effects of Non-Uniform Property Distribution Due to Compression in the Gas Diffusion Layer of a PEMFC," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 35, pp. 2936~2948.
- (10) Han, K., Hong, B.K., Kim, S.H., Ahn, B.K. and Lim, T.W., 2010, "Influence of Anisotropic Bending Stiffness of Gas Diffusion Layers on the Electrochemical Performances of Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 35, pp. 12317~12328.
- (11) Saha, L.K., Tabe, Y. and Oshima, N., 2012, "Effect of GDL Deformation on the Pressure Drop of Polymer Electrolyte Fuel Cell Separator

- Channel,” *Journal of Power Sources*, Vol. 202, pp. 100~107.
- (12) Wilde, P.M., Mandle, M, Murata, M. and Berg, N., 2004, “Structural and Physical Properties of GDL and GDL/BPP Combination and Their Onfluence on PEMFC Performance,” *Feul Cells*, Vol. 3, pp. 180~184.
- (13) Chang, W.R., Hwang, J.J., Weng, F.B. and Chan, S.H., 2007, “Effect of Compression on Liquid Water Transport and Microstructure of PEMFC Gas Diffusion Layers,” *Journal of Power Sources*, Vol. 163, pp. 784~792.
- (14) Bazylak, A., Sinton, D., Liu, Z.S. and Djilali, N., 2007, “The Effect of Air Stoichiometry Change on the Dynamic Behavior of a Proton Exchange Membrane Fuel Cell,” *Journal of Power Sources*, Vol. 185, pp. 302~310.
- (15) Ceraolo, M., Miulli, C. and Pozio, A., 2002, “Modeling Static and Dynamic Behavior of Proton Exchange Membrane Fuel Cells on the Basis of Electro-Chemical Description,” *Journal of Power Sources*, Vol. 113, pp. 131~144.