

고분자 전해질 연료전지의 환원극 블록과 공기 유량 영향에 대한 전산 해석 연구

조성훈 · 김준범[†]

울산대학교 화학공학부
(2022년 1월 5일 접수, 2022년 1월 20일 수정, 2022년 1월 20일 채택)

A Numerical Study of Cathode Block and Air Flow Rate Effect on PEMFC Performance

Seonghun Jo and Junbom Kim[†]

School of Chemical Engineering, University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea
(Received January 5, 2022; Revised January 20, 2022; Accepted January 20, 2022)

초 록

고분자 전해질막 연료전지의 반응물인 수소와 산소는 기체 상태이므로, 반응물이 원활히 전달될수록 작동 전압의 손실을 줄일 수 있다. 높은 전류밀도 영역에서 산소 물질 전달이 전압 손실을 좌우하므로, 환원극 유로의 형상 변경에 대한 연구들이 진행되어 왔다. 환원극 유로 형상 중에서 유로를 막는 블록은 반응물을 다공성 매질인 기체확산층으로 강제 대류 하도록 사용되었다. 본 연구에서는 간단한 단 채널의 연료전지 모델에 블록을 배치하였다. 전산 유체역학을 사용하였고, 공기 공급 유량을 달리하였을 때 블록으로 인한 강제 대류 효과가 전압-전류 곡선과 국부 전류 밀도에 대한 영향을 연구하였다. 기체확산층으로의 강제 대류 현상을 통하여 적은 공기 공급 유량으로도 높은 전류 밀도를 얻을 수 있었다. 다수의 블록을 직렬로 배치한 경우에 1개의 블록만 배치한 것보다 강제 대류 효과를 증가시켜 높은 전류밀도를 얻을 수 있었다.

Abstract

Reactants of PEMFC are hydrogen and oxygen in gas phases and fuel cell overpotential could be reduced when reactants are smoothly transported. Numerous studies to modify cathode flow field design have been conducted because oxygen mass transfer in high current density region is dominant voltage loss factor. Among those cathode flow field designs, a block in flow field is used to forced supply reactant gas to porous gas diffusion layer. In this study, the block was installed on a simple fuel cell model. Using computational fluid dynamics (CFD), effects of forced convection due to blocks on a polarization curve and local current density contour were studied when different air flow rates were supplied. The high current density could be achieved even with low air supply rate due to forced convection to a gas diffusion layer and also with multiple blocks in series compared to a single block due to an increase of forced convection effect.

Keywords: PEMFC, Numerical analysis, Block, Forced convection, Flow field design

1. 서 론

고분자 전해질 연료전지(polymer electrolyte membrane fuel cell, PEMFC)은 수소와 산소의 전기화학 반응을 통해 전기를 생산하는 장치이다. 반응을 위해 공급되는 연료가 운전 조건에서 기체상이기 때문에 연료전지 내부에서는 연료 기체의 대류와 확산이 적절히 이루어져야 한다. 연료전지 내부 유동장(flow field)은 반응 표면적을 최대한 활용하도록 그래파이트(graphite) 또는 금속 재질의 분리판(bipolar plate, BP)에 유로를 음극 또는 양극으로 형성한다. 이처럼 반응 유체가 흐를 수 있도록 형성된 유로에서는 입구와 출구의 압력 기울기로

인한 대류가 지배적인 물질전달 메커니즘이다. 연료전지에서 반응 유체는 유로-확산층-전극의 순서에 따라 전기화학 활성 지점으로 이동하는데, 이 때 전극 표면에서 일어나는 전기화학 반응과 유로에서의 대류에 의한 혼합으로 확산층에서 농도 기울기가 발생하며 그로 인하여 확산층 영역에서는 확산 전달이 지배적이다[1]. 확산은 기체확산층(gas diffusion layer, GDL)과 미세다공층(micro porous layer, MPL)의 물리적 특성에 큰 영향을 받는다[2-5]. 대류의 경우 분리판의 형태나 구조에 따라 그 영향이 크게 달라질 수 있는데, 원활한 대류가 일어나지 못한다면 입구와 출구에서의 반응물 농도에 차이를 보이며 연료전지 내구성 및 성능 저하를 야기한다. 특히, 연료전지가 높은 전류 밀도를 출력할 때, 촉매 표면에서의 전기화학 반응 속도가 반응 지점에서의 물질 전달 속도를 넘어서게 되는 지점이 생기는데, 이 때 전압의 급격한 감소가 발생한다. 이를 물질 전달 손실(loss) 또는 물질 전달 과전압(overpotential)이라고 불린다. 환원극에서는 일반적으로 순수한 산소 대신 공기가 사용되며 산소의 확산계수가 산화극의 수소의 확산

[†] Corresponding Author: University of Ulsan
School of Chemical Engineering, Ulsan 44610, Korea
Tel: +82-52-259-1510 e-mail: jbkim@ulsan.ac.kr

계수보다 작으므로 환원극에서의 물질 전달이 고 전류 밀도에서의 연료전지 전압 손실에 지배적인 요인이다. 따라서 환원극 연료인 공기의 물질 전달 속도를 늘리기 위한 환원극 분리판 유로의 설계가 필요하다.

연료전지 분리판은 일반적으로 세 가지 유로 패턴인 평행(parallel), 사형(serpentine), 인터디지테이트(interdigitated) 구조로 구분되며, 연료전지의 전류 밀도를 높이거나 물 배출 능력을 높이기 위해서 분리판의 다양한 형태가 연구되고 있다[6-9]. 평행 구조는 유로의 입출구가 여러 갈래의 평행한 유로를 통해 연결된다. 유체가 흐를 수 있는 경로가 다수 존재하기 때문에 유로의 구조에 의한 압력 강하가 다른 유로 패턴에 비해 낮다. 연료전지 운전에서는 내부 압력 손실이 클수록 공기 공급계의 컴프레서가 더 많은 전력을 요구하게 되어 전체 시스템의 전력이 낮아지기 때문에 압력 손실은 분리판 설계 시 고려해야 할 중요한 변수이다. 또한 유로의 국부 지역에서는 환원극 산소환원반응(oxygen reduction reaction, ORR)으로 인해 생성된 물이 축적되어 반응 유체의 공급 경로를 막는 플러딩(flooding) 현상이 일어날 수 있으며 결과적으로 물질 전달 손실을 증가시킨다[10-13]. 평행 구조의 입구 및 출구를 연결하는 매니폴드(manifold) 구조에 따라 각각의 유로 간 유동 분배가 균일하지 않을 수 있다는 단점이 있다. 사형 구조는 연료전지에서 찾을 수 있는 가장 일반적인 분리판 형태이며 평행 유로와 다르게 하나의 유로로 입구와 출구가 연결된다. 압력 손실이 크지만 높은 입출구의 차압을 통해 연료전지 내부의 수분을 제거하는데 효과적이다. 단, 넓은 면적의 연료전지에서는 높은 압력 손실이 야기되며, 이는 연료전지 시스템의 높은 기생 전력(parasitic power)과 효율 감소를 야기한다[14,15]. 인터디지테이트 구조는 앞서 언급한 두 가지 형태의 구조와 달리, 입구와 출구의 유로가 입구와 출구가 직접적으로 연결되어 있지 않다. 공급된 반응 유체는 다공성의 기체확산층을 통과하며 강제 대류(forced convection)를 통한 물질 전달이 일어난다. 확산에 의한 물질 전달보다 촉매 영역에서의 경계층 두께를 감소시켜 촉매층에서의 반응 속도를 향상시킨다[16]. 인터디지테이트 구조는 연료전지 분리판에 전체적으로 적용되는 패턴이지만, 동일한 강제 대류 효과를 국부 면적에 적용하기 위해서 유로 내에 블록(block)을 구성할 수 있다[17]. Wu[18]는 유로 내에 설치한 블록의 개수에 따른 연료전지의 해석 결과에 따라 최적의 블록 배열 파라미터를 구하는 연구를 수행하였다. Barati[19]는 직사각형과 삼각형의 형태의 블록을 유체 흐름 방향에 따라 높이를 달리하였을 때의 반응물 분포를 2 차원 수학 모델로 제시하였다.

블록이 연료전지의 성능에 미치는 영향은 블록의 형태를 변경하는 방법을 통한 많은 연구가 수행되고 있다. 따라서 본 연구에서는 환원극의 블록이 존재하는 간단한 형상의 유로에서 공기 공급 유량을 변경시킬 때, 강제 대류가 일어나는 정도를 전산 해석적으로 비교하였다. 또한 블록이 존재하지 않을 때와 1개, 4개의 블록을 갖는 유로에서 동일한 해석 조건으로 계산을 실행하여 블록의 개수에 대한 강제 대류 효과를 알아보려 하였다. 전산 해석적 방법을 통해 3차원으로 설계된 단 채널 연료전지로 계산을 진행하였기 때문에, 실제 실험을 통해 일부 조건에서 실험 결과와 전산 해석 계산 결과의 경향성을 비교하여 검증하였다.

2. 실험

2.1. 지배방정식

반응이 존재하는 시스템의 연속 방정식(continuity equation)은 식

(1)과 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_i \vec{v}_i) S_i \quad (1)$$

식 1에서 ρ 는 밀도, \vec{v} 는 유체의 속도, S 는 근원 항(source term)으로 화학 종 i 의 반응으로 인한 생성과 소모를 의미한다. 연료전지 내의 반응에서는 소모되는 화학종으로 수소와 산소, 생성되는 화학종으로는 물이 식 (1)에 적용된다.

유체의 거동을 나타내는 운동량 보존 방정식(momentum conservation equation)은 다음 식 (2-1)과 (2-2)로 표현된다.

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \vec{v}) + \nabla \cdot (\rho \vec{v} \vec{v}) = -\nabla p + \nabla \cdot (\vec{\tau}) + \rho \vec{g} + \vec{F} \quad (2-1)$$

$$\vec{\tau} = \mu \left[(\nabla \vec{v} + \nabla \vec{v}^T) - \frac{2}{3} \nabla \cdot \vec{v} I \right] \quad (2-2)$$

식 (2-1)에서 p 는 정압(static pressure), $\vec{\tau}$ 는 스트레스 텐서, μ 와 I 는 각각 유체의 점도와 단위 텐서를 의미하며 $\rho \vec{g}$ 는 유체에 작용하는 중력 항, \vec{F} 는 다공성 매질(porous-media)을 통과하는 유체에 대한 운동량 손실 벡터이다. 스트레스 텐서는 식 (2-2)로 표현할 수 있다.

반응 유체인 수소와 산소는 유로를 통해 흐르며 확산(diffusion) 메커니즘으로 다공성의 기체확산층을 통과하여 전극에 도달한다. 이 때, 유체는 수소, 산소, 질소와 수증기 등의 다 성분(multi-component) 유체이기 때문에 다 성분 확산을 고려한 물질 전달 방정식인 Maxwell-Stefan 방정식으로 해석에 적용되며 식 (3-1)으로 표현된다.

$$\sum_{j \neq i}^N \frac{X_i X_j}{D_{ij}} (\vec{V}_j - \vec{V}_i) = \vec{d}_i - \frac{\nabla T}{T} \sum_{j \neq i}^N \frac{X_j X_i}{D_{ij}} \left(\frac{D_{T,j}}{\rho_j} - \frac{D_{T,i}}{\rho_i} \right) \quad (3-1)$$

위 식에서 X 는 화학종에 대한 몰 분율(mole fraction)이며 \vec{V} 는 확산 속도(diffusion velocity), D_{ij} 는 2성분 확산계수(diffusion coefficient), $D_{T,i}$ 는 열 확산 계수(thermal diffusion coefficient), T 는 절대 온도로 정의된다. 이상 기체의 경우에 Maxwell 확산 계수는 2성분 확산 계수와 같다. 만약 외력(external force)이 모든 화학종에 동일하게 적용되어 압력에 대한 확산이 무시될 수 있다면, $\vec{d}_i = \nabla X_i$ 로 표현될 수 있다. 질량 플럭스 벡터(diffusive mass flux vector)는 $\vec{J}_i = \rho_i \vec{V}_i$ 이므로 몇 가지 수학적 조작을 통해 식 (3-1)을 다음으로 간략히 표현할 수 있다.

$$\vec{J}_i = -\sum_{j=1}^{N-1} \rho D_{ij} \nabla Y_j - D_{T,i} \frac{\nabla T}{T} \quad (3-2)$$

N 은 화학종의 수, Y_j 는 화학 종 j 의 질량 분율로 정의된다. 다른 항은 다음으로 표현된다.

$$D_{ij} = [D] = [A]^{-1} [B] \quad (3-3)$$

$$M_{w,m} = \left(\sum_{i=1}^N \frac{Y_i}{M_{w,i}} \right) \quad (3-4)$$

$$A_{ii} = - \left(\frac{X_i}{D_{iN}} \frac{M_{w,m}}{M_{w,N}} + \sum_{j=1}^{N-1} \frac{X_j}{D_{ij}} \frac{M_{w,m}}{M_{w,i}} \right) \quad (3-5)$$

$$A_{ij} = X_i \left(\frac{1}{D_{ij}} \frac{M_{w,m}}{M_{w,i}} + \frac{1}{D_{iN}} \frac{M_{w,m}}{M_{w,N}} \right) \quad (3-6)$$

$$B_{ii} = - \left(X_i \frac{M_{w,m}}{M_{w,N}} + (1 - X_j) \frac{M_{w,m}}{M_{w,i}} \right) \quad (3-7)$$

$$B_{ij} = X_i \left(\frac{M_{w,m}}{M_{w,j}} + \frac{M_{w,m}}{M_{w,N}} \right) \quad (3-8)$$

[A]와 [B]는 $(N - 1) \times (N - 1)$ 크기의 행렬이다. [D]는 일반화된 Fick의 법칙의 확산 계수 D_{ij} 에 대한 행렬이며 $(N - 1) \times (N - 1)$ 의 크기를 갖는다. M_w 는 분자량이며 하 첨자 m 은 혼합물에서의 평균 분자량을 의미한다.

연료전지 해석에서 전기화학반응에 대한 모델은 가장 중요하게 고려된다. 각 전극에서 일어나는 산화환원반응의 구동력(driving force)은 고체상 전위(ϕ_{sol})와 전해질막 전위(ϕ_{mem})의 전위차인 표면 과전압(surface over-potential)이다. 따라서 전체 연료전지 모델을 해석하려면 고체 물질, 집전판(current collector), 다공성 기체확산층으로의 전자 전달 방정식과 전해질 막에서의 양성자 이동 방정식이 요구되며 식 (4-1)과 (4-2)로 표현할 수 있다.

$$\nabla \cdot (\sigma_{sol} \nabla \phi_{sol}) + R_{sol} = 0 \quad (4-1)$$

$$\nabla \cdot (\sigma_{mem} \nabla \phi_{mem}) + R_{mem} = 0 \quad (4-2)$$

위 식에서 σ 는 전기전도도, ϕ 는 전위, R 은 체적 전달 전류(volumetric transfer current)이다. 전류 근원 항 R 은 촉매층에서 0이 아니며 교환 전류 밀도(exchange current density)라고 불린다. 이 때 해당 항을 식 (4-3)과 (4-4)의 Butler-Volmer 방정식으로 표현할 수 있다.

$$R_{an} = (\zeta_{an} j_{an}^{ref}) \left(\frac{[A]}{[A]_{ref}} \right)^{\gamma_{an}} \left(e^{\alpha_{an} F \eta_{an} / RT} - e^{-\alpha_{an} F \eta_{an} / RT} \right) \quad (4-3)$$

$$R_{cat} = (\zeta_{cat} j_{cat}^{ref}) \left(\frac{[C]}{[C]_{ref}} \right)^{\gamma_{cat}} \left(-e^{\alpha_{cat} F \eta_{cat} / RT} + e^{-\alpha_{cat} F \eta_{cat} / RT} \right) \quad (4-4)$$

2.2. PEMFC 형상 격자 및 경계 조건

본 연구는 직선 유로와 다수의 블록을 갖는 단 채널 연료전지의 전산 해석을 통해 진행되었다. 연료전지 모델의 반응 면적은 1.5 cm^2 , 환원극과 산화극의 연료 공급 방향이 서로 교차하는 항류(counter-current flow)로 설정하였으며 해석에 사용된 3차원 모델을 Figure 1(a)에 표현하였다. 해석은 블록의 개수로 구분하여 세 가지 모델을 각각 제작하여 진행되었으며, 세 가지 모델에 대한 측면 그림을 Figure 1(b)에 나타내었다. 블록은 유로의 모든 부분을 막아 강제 대류를 효과적으로 관측할 수 있도록 구성하였다. Table 1에 유로 형상에 대한 기하학적 정보를 나타내었다.

해석을 위한 입력 매개변수와 경계 조건을 Table 2에 나타내었다. 본 연구는 상용 전산 해석 프로그램인 ansys fluent 2020의 연료전지 해석 모듈을 사용하였다. 해석은 정상 상태(steady-state), 층류 흐름(laminar flow), 비압축성 유동(incompressible flow) 조건에서 진행되었으며 열 전달과 증력은 고려하지 않았다. 반복 계산에서의 잔차(residual)가 10^{-6} 이하일 때 해석이 수렴되었다고 판단하도록 하였으며 해석의 수렴성을 증가시키기 위하여 모멘텀과 압력, 화학 중, 수분 응축에 대한 감속 완화 계수(under relaxation factor)를 각각 0.3, 0.7, 0.95, 0.95로 설정하였다.

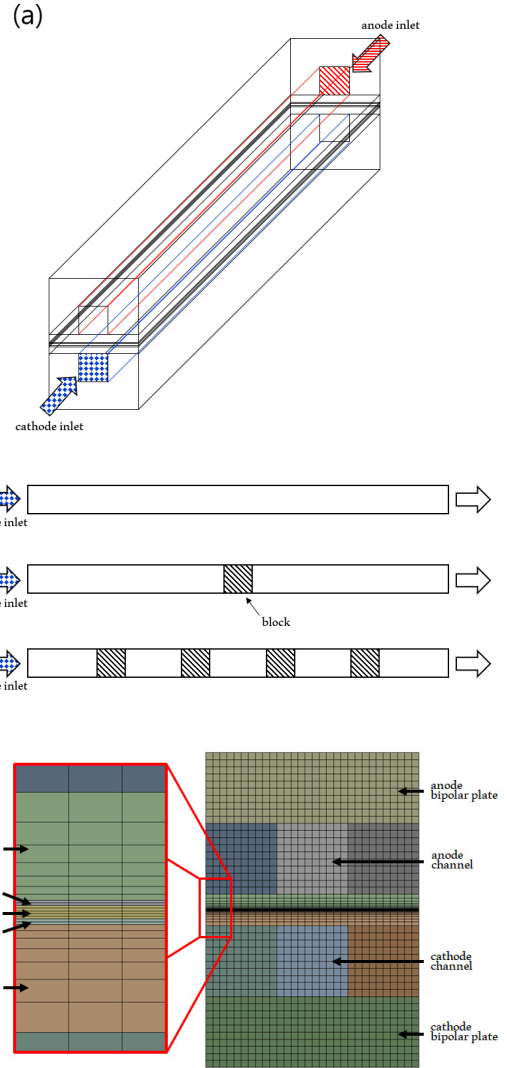


Figure 1. Schematic geometry and mesh domain for PEMFC (a) Geometry, (b) Position of blocks in cathode, (c) Mesh configuration of cross section domain.

Table 1. Cross Sectional Geometry for PEMFC Model

Geometry	value	Unit	Mesh layer
<i>Channel</i>			
Length x height x width	$50 \times 1 \times 1$	mm	10
<i>Block</i>			
Length x height x width	$1 \times 1 \times 1$	mm	10
<i>Bipolar plate</i>			
Thickness	1	mm	10
<i>Gas diffusion layer</i>			
Thickness	200	μm	7
<i>Catalyst layer</i>			
Thickness	10	μm	2
<i>Membrane</i>			
Thickness	25	μm	5

Table 2. Analysis Parameters and Operating Conditions

Property	value	Unit
<i>Operating condition</i>		
Temperature	65	°C
Pressure	1	atm
Anode relative humidity	0	%
Cathode relative humidity	100	%
Anode mass flow rate	3.73×10^{-8}	k/s
Cathode mass flow rate (100%)	1.72×10^{-6}	kg/s
<i>Membrane</i>		
Equivalent weight, EW	1100	-
Proton conduction coefficient, β_{mem}	1	-
Proton conduction exponent, ω_i	1	-
Water diffusivity coefficient, η_λ	1	-
Absolute permeability, K	1×10^{-18}	m ²
<i>Gas diffusion layer</i>		
Porosity, ϵ	0.6	-
Absolute permeability, K	3×10^{-12}	m ²
Contact angle	110	deg
Water removal coefficient	5×10^{-5}	s/m
<i>Catalyst layer</i>		
Porosity, ϵ	0.2	-
Absolute permeability, K	2×10^{-13}	m ²
Surface to volume ratio, ζ	2×10^5	m ² _{PV} /m ³
Contact angle	95	Deg
<i>Reaction parameters</i>		
Anode reference exchange current density, j_a^{ref}	10000	A/m ²
Cathode reference exchange current density, j_c^{ref}	10	A/m ²
Anode reference concentration, $[H_2]_{ref}$	1	kmol/m ³
Cathode reference concentration, $[O_2]_{ref}$	1	kmol/m ³
Anode concentration exponent, ν_a	1	-
Cathode concentration exponent, ν_c	1	-
Anode transfer coefficient, α_{an}	1	-
Cathode transfer coefficient, α_{cat}	1	-

수소와 공기의 공급 유량은 이론적으로 1600 mA/cm²를 출력할 수 있는 유량에 양론 비율(stoichiometric ratio)을 각각 1.5, 2.0을 곱하여 입력하였다. 단, 본 연구에서는 공기 공급 유량을 실험 변수로 설정하였으므로 수소 공급 유량은 모든 경우에서 동일한 값으로 공급하였다. 실제 실험에서는 반응 유체를 mL/min단위의 체적 유량(volumetric flow rate)으로 공급하였으며, 전산 해석에서는 kg/s 단위로 환산된 질량 유량(mass flow rate)으로 경계 조건 값을 입력하였다. 실험과 전산 해석에 사용된 공기 유량의 값을 Table 3에 나타내었다. 각 해석에 대한 결과는 ‘EXP_100’, ‘B1_50’ 등으로 표현하였다. 실험 결과를 뜻하는 EXP와 전산 해석에서의 블록의 개수에 따라 B0, B1, B4로 표기하였으며, 공기 공급 유량 퍼센트를 같이 표현하였다.

Table 3. Air Flow Rate for Various Cases

Case	Flow field	Air flow rate (Cathode)		
		Volumetric flow rate (mL/min)	Mass flow rate (kg/s)	Percent (%)
0-1	Experiment (EXP)	1330		100
0-2		1000		75
0-3		663		50
0-4		332		25
1-1	0 block (B1)		1.72×10^{-6}	100
1-2			1.29×10^{-6}	75
1-3			0.86×10^{-6}	50
1-4			0.43×10^{-6}	25
2-1	1 block (B1)		1.72×10^{-6}	100
2-2			1.29×10^{-6}	75
2-3			0.86×10^{-6}	50
2-4			0.43×10^{-6}	25
3-1	4 blocks (B4)		1.72×10^{-6}	100
3-2			1.29×10^{-6}	75
3-3			0.86×10^{-6}	50
3-4			0.43×10^{-6}	25

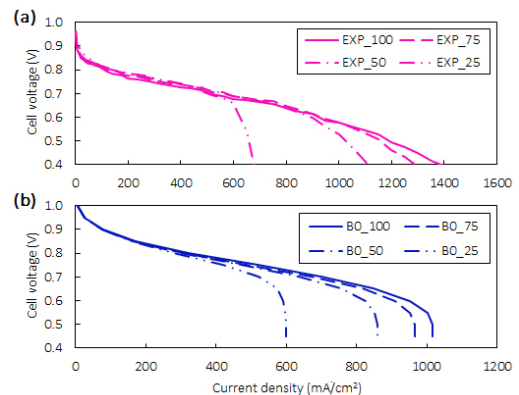


Figure 2. Comparison between numerical and experimental data (a) Experimental data with 25cm², 5 channel serpentine fuel cell, (b) Numerical data with B0.

3. 결과 및 고찰

5채널의 사형 구조를 갖는 전극 면적 25 cm²인 단위 연료전지 (CNL)와 상용 막전극접합체(G type, CNL)를 사용하여 전산 해석 결과와의 검증 비교를 통해 실험을 수행하였다. 연료전지 성능 안정화를 위한 전압 순환 활성화 기법을 15회 반복 수행한 뒤, 각 공기 공급 유량 조건에서 전압-전류 곡선을 얻었다. 실험 결과는 블록이 없는 일반 사형 구조로 진행되었으므로, 동일한 경향성 비교를 위하여 블록이 없는 직선 유로에 대한 전산 해석 결과와 비교하였으며, 두 결과 값을 Figure 2에 나타내었다. 전산 해석에서 사용된 단 채널 직선 유로와는 달리, 실험에는 넓은 면적을 효율적으로 사용할 수 있는 5 채널의 사형 구조를 사용하였기 때문에 동일한 공기 공급 유량에서 전

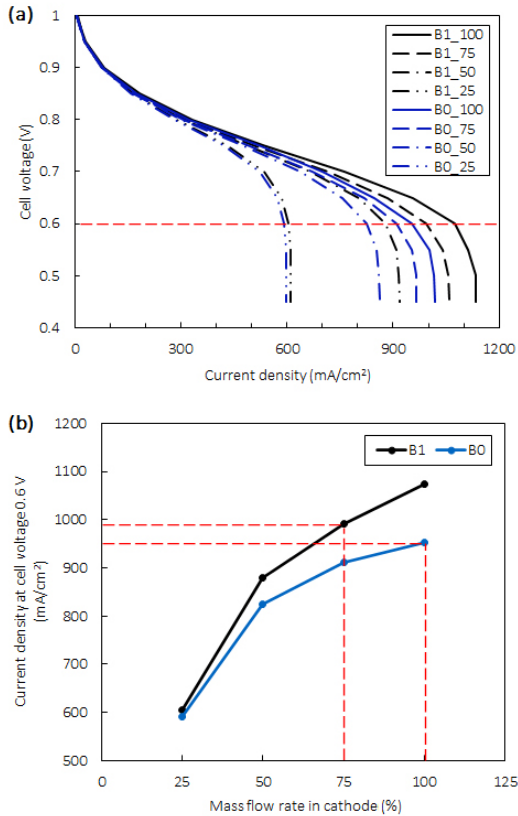


Figure 3. Effects of one block for various air flow rate (a) Polarization curve, (b) Current density at cell voltage of 0.6 V.

류 밀도가 최대 500 mA/cm² 높게 측정되었으며 실험 결과는 전산 해석 결과에 비해서 저항 손실 영역이 더 높은 전류 밀도까지 지속되는 차이를 보였다. 하지만 두 결과의 경향성만을 비교해보면, 공기 공급 유량이 증가할수록 전류 밀도가 증가하는 비율이 점차 감소한다. 따라서 공기 공급 유량에 따른 실험과 해석 결과의 전압-전류 곡선 경향성이 유사한 것을 확인하였다.

3.1. 블록의 유무에 대한 성능 비교 및 분석

Figure 3(a)는 해석에 사용된 공기 공급 유량(25, 50, 75, 100%)에서 B0와 B1의 전압-전류 곡선을 나타낸 것이다. B0와 B1 각각의 조건에 대한 결과의 경향성을 먼저 해석하였다. 두 조건 모두 300 mA/cm² 보다 낮은 전류 밀도 영역에서는 공급 유량에 따라 그래프의 큰 차이를 보이지 않는데, 이는 모든 부하 전류 밀도가 낮을 때는 전기 화학 반응에 필요한 산소의 양이 크게 요구되지 않기 때문이다. 즉, 공기의 물질 전달이 전압 손실에 지배적이지 않다는 것을 의미한다. 반면에, 300 mA/cm² 보다 높은 전류 밀도 영역에서는 점차 반응에 필요한 산소의 양이 증가하며 공기를 가장 적게 공급한 25%의 해석 결과부터 급격하게 셀 전압이 감소하는 모습을 보였다. 공기의 공급량이 증가함에 따라 같은 전압 조건에서 전류 밀도가 상승하는 경향을 보였다. 또한 등간격으로 0.43 × 10⁶ kg/s (25%)씩 증가하는 공기 공급량과는 달리, 전류 밀도는 그 증가 비율이 점차 감소하였다. 같은 공기 공급 조건에서 비교하였을 때, 공기 공급량이 25%일 때에는 B0와 B1의 전압-전류 곡선의 차이가 거의 존재하지 않는다. 공기 공급량이 증가할수록 차이가 벌어지며 100%에서 가장 큰 전류 밀도 차이를 보였다.

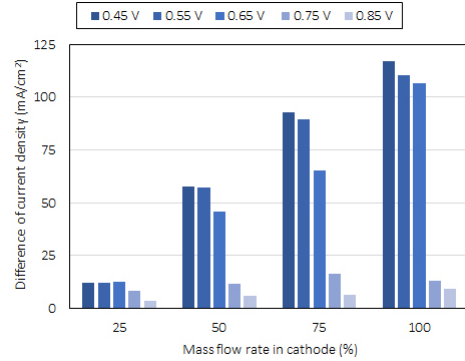


Figure 4. Current density differences between B0 and B1 at various air flow rate.

일반적인 연료전지 작동 전압(0.6 V)에서의 총 전류 밀도를 더욱 자세히 비교하기 위해 Figure 3(b)에 나타내었다. Figure 3(a)의 전체 경향에서 파악한 것처럼, 가장 적은 유량 조건인 25%에서 50%로 증가할 때 0.6 V에서의 전류 밀도가 급격하게 증가하였다. 또한, 유로 B0에 100%의 공기를 공급했을 때의 전류 밀도는 952 mA/cm²로, 블록이 있는 유로 B1에 더 적은 유량인 75%를 공급하였을 때 계산된 전류 밀도인 993 mA/cm² 보다 약 40 mA/cm² 낮은 전류 밀도가 계산되었다. 따라서, 연료전지 유로에 블록을 배치하는 것은 단순히 연료전지의 전류 밀도를 높일 뿐 아니라, 더 적은 공기 공급량으로도 블록이 없는 유로에 비해 더 높은 전류 밀도를 출력할 수 있음을 확인하였다.

각 작동 전압에서 블록의 유무에 따른 성능 증가를 더욱 세밀하게 분석하고자 하였다. 이에 추가적으로 Figure 4에 x축에는 공기 공급 유량, y축에는 작동 전압에 따른 B0와 B1의 전류 밀도 차이를 표현하였다. 모든 해석 조건에서 B1의 전류 밀도가 B0의 전류 밀도보다 큰 값을 보였기 때문에 전류 밀도 차이의 음수 여부는 따로 표기하지 않았다. 25% 공급 조건에서는 두 값의 차이가 10 mA/cm² 내이었으며 전압 조건에 따른 큰 차이를 보이지 않았다. 0.85 V에서 0.65 V까지 약 5 mA/cm²/0.1 V의 증가율을 보이다 0.65 V에서 0.45 V까지 전류 밀도의 차이가 거의 일정하게 유지되었다. 반면, 50% 공급 조건에서는 0.85 V에서부터 0.45 V까지 꾸준한 전류 밀도 증가의 경향을 보였으며, 특히 0.65 V에서 34 mA/cm²/0.1 V의 순간적으로 높은 증가율을 보였다. 75%와 100% 공급 조건에서는 0.65 V에서 50%보다 더 높은 증가율을 보였으며 그 값은 각각 49 mA/cm²/0.1 V, 93 mA/cm²/0.1 V으로 계산되었다. 0.65 V내외에서 블록으로 인한 전류 밀도의 증가가 가장 뚜렷하게 드러났다.

유로 내에서 블록이 미치는 영향을 시각적으로 확인하기 위하여 셀 전압이 0.45 V일 때 기체확산층과 촉매층의 계면에 대한 블록 주위의 국부 전류 밀도와 측면에서 바라본 유로 내에서의 유동 흐름을 Figure 5(a)와 Figure 5(b)에 각각 표현하였다. 유로 B1에 대한 블록 주위의 국부 전류 밀도를 보면, 25%를 제외한 나머지 공급 조건에서 공급 유량이 증가할수록 블록 전단의 국부 지역에서 반시계 방향으로 90도 꺾인 U자 형태의 전류 밀도 피크가 나타났으며 100% 공급 조건에서 최대 1700 mA/cm²의 전류 밀도가 계산되었다. 반면, 동일한 위치에서의 B0의 국부 전류 밀도는 유체 흐름 방향에 따라 전류 밀도에 큰 차이를 보이지 않았다. 또한 B1의 유로와 기체확산층이 직접적으로 맞닿지 않는 영역을 점선으로 강조한 부분을 보면, 블록 주위로 약 1000 mA/cm²의 전류 밀도가 분포하고 있으며 공급 유량이 높을수록 그 영

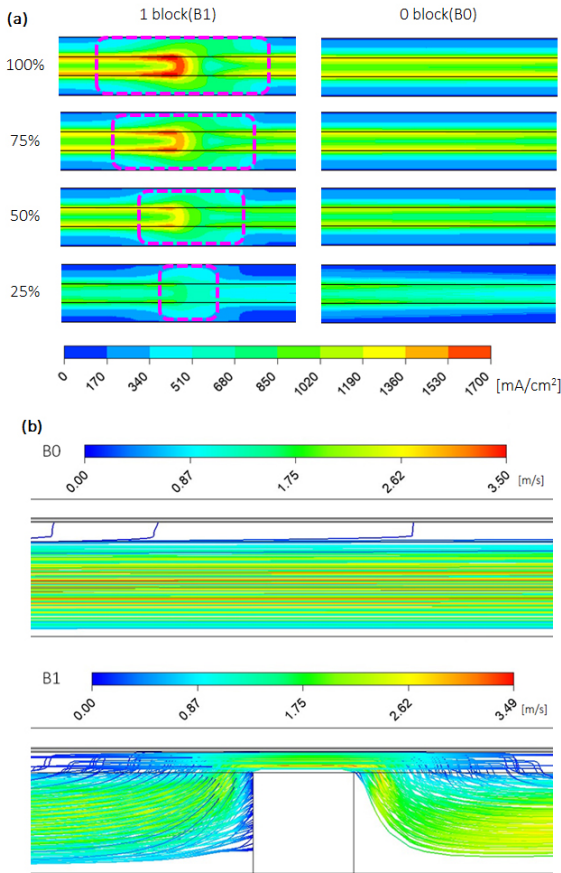


Figure 5. Visualization of block effects (a) Local current density for B1 and B0, (b) Side view of air velocity streamline.

역이 넓어지는 것을 확인하였다. Figure 5(b)에서 블록이 없는 유로와 달리, 블록이 존재하는 경우에 환원극에 공급되는 공기의 기존 진행 경로를 방해하는 것을 확인할 수 있는데, 이 때문에 직선 유로와 평행하게 흐르던 유체는 기체확산층 방향으로 경로가 변경된다. 때문에 유로 내의 블록은 연료전지의 다공성 확산층과 촉매 방향으로 반응 유체의 물질 전달을 수월하게 만들어 준다고 판단하였다. 결과적으로 환원극의 블록은 공기의 공급 유량이 증가함에 따라 물질 전달 손실을 줄여 한계 전류 밀도를 높인다. 반면에, 블록이 없는 유로는 반응물이 단지 유체의 진행 방향에 수직 방향으로의 확산에 의해서만 기체확산층을 통과하여 전기 화학 반응에 참여하므로 상대적으로 더 낮은 전류 밀도를 보였다.

3.2. 직렬로 배치된 4개의 블록에 대한 성능 비교 및 분석

환원극 유로 내에 블록을 배치하였을 때, 블록이 없는 유로보다 더 적은 유량 조건에서 높은 전류 밀도를 가지며 블록이 반응 유체의 진행 방향을 기체확산층 방향으로 강제함에 따라 물질 전달 손실이 감소하여 동일한 전압 조건에서 전류 밀도가 더욱 높게 계산되었다. 4개의 블록을 동일한 해석 도메인 내에 등간격으로 배치하여, 다수의 블록이 유동 및 전류 밀도에 미치는 영향을 알아보고자 하였다. Figure 6(a)은 Figure 3(a)와 동일한 방법으로 공기 공급 유량(25, 50, 75, 100%)에 따른 B1과 B4의 전압-전류 곡선을 표현하였다. B4의 전압-전류 곡선은 동일한 공급 유량의 조건에서 B1보다 더 높은 전류 밀도

를 보였다.

셀 전압 0.6 V에서 공기 공급 유량에 대한 B0, B1, B4의 전류 밀도를 Figure 6(b)에 표현하였다. 블록의 개수와 유무에 관계없이 공기의 공급 유량이 증가할수록 0.6 V에서의 전류 밀도 값이 증가하며, 기울기는 점차 감소하는 경향을 뚜렷하게 확인하였다. 앞서 언급했던 내용으로, 더 적은 공기 공급 조건에서 블록을 배치하였을 때 높은 전류 밀도를 얻을 수 있었다. 4개의 블록을 직렬로 배치하였을 때, 50% 공기 공급 조건에서의 전류 밀도는 996 mA/cm²로 계산되었는데 이는 1개의 블록이 75%의 공급 조건에서 계산된 전류 밀도인 993 mA/cm²보다 근소한 차이로 높았다. B0와 B4를 비교한다면, 블록이 없는 유로에 100%의 공기를 공급하는 것보다 절반의 공급 유량으로 4개의 직렬로 배치된 블록이 있는 유로에 공급하는 것이 54 mA/cm² 높은 전류 밀도를 갖는다. 이는 전산 해석이 진행된 단 채널의 단위 연료전지의 반응 면적이 매우 작기 때문에 실제 출력 전류의 차이는 크지 않지만, 대 면적을 갖는 연료전지 스택으로 확장(scale up)된다면 그 차이는 크게 증가할 수 있다. 또한 공기의 공급 유량을 줄이면서도 부하 전류의 감소없이 연료전지 공기 공급 시스템에 필요한 컴프레서의 요구 동력을 줄일 수 있는 것은 큰 장점으로 판단할 수 있다.

마지막으로 4개의 직렬로 배치된 블록이 국부 전류 밀도에 미치는 영향을 확인하기 위해서 셀 전압 0.45 V에서의 국부 전류 밀도 분포를 Figure 7에 표현하였다. 25%의 공기 공급 조건에서는 유로의 출구까지 전류 밀도가 고르게 분포되지 않았다. 다수의 블록이 공기의 흐름을 방해하는 장애물로서 작용하였으므로 환원극 입구에서 가까운 블록에서 가장 높은 국부 전류 밀도가 계산되었고, 출구에 가까워질수록 전류 밀도의 출력이 눈에 띄게 감소하였다. 50% 공급 조건부터는 출구와 가까운 유로까지 500~1000 mA/cm² 정도의 국부 전류 밀도의 분포를 확인할 수 있었다. 75%와 100%의 조건에서는 B1에서 확인하였던 U자 형태의 국부 전류 밀도 피크를 뚜렷하게 확인할 수 있었다. 높은 공급 유량 조건에서 입구에서 가장 가까운 블록 근처에 전류 밀도가 피크 전류 밀도의 10%에 해당하는 낮은 값을 보였다. 이는 항류 조건과 모든 조건에서 동일한 수소 유량을 공급한 이유로 예상할 수 있다. 환원극의 출구 방향에서 항류로 공급되는 수소는 환원극 블록과 과량의 공기 공급량으로 인해 더욱 활성화된 전기 화학 반응으로 환원극 입구에 가까워질수록 분율이 급격히 감소한다. Figure 8에 B4의 조건에서 기체확산층에서의 수소 질량 분율을 표현하였다. Figure 8의 100% 조건에 대한 수소 분율 분포를 보면, 입구에서부터 급격한 수소 소모가 일어나며 유로의 절반을 지날 때 이미 분율이 0.3 이하로 감소하는 것을 확인할 수 있다. 이는 25%의 조건과 크게 비교되는데, 부족한 공기 공급량으로 인해 전기 화학 반응이 원활히 일어나지 못한 해당 조건에서는 수소 분율이 100% 조건보다 유로 전반에 걸쳐 고르게 감소한다. 따라서 다수의 블록을 직렬로 배치할 경우, 항류와 같은 공급 방향을 고려할 필요가 있다고 판단된다.

4. 결 론

본 연구에서는 단 채널 유로에서 블록의 개수를 달리하였을 때 환원극에 공급되는 공기 공급 유량이 연료전지의 성능에 미치는 영향을 전산 해석적으로 분석하였다. 환원극에 배치된 블록은 공기 유동에 직접적인 관여를 하게 되며, 기체확산층으로의 강제 대류를 통해 같은 전압 조건에서 더 높은 전류 밀도의 출력을 가능하게 하였다. 또한 유로와 맞닿지 않는 다공성 확산층에 유체를 공급하게 함으로써 더욱 효율적으로 촉매를 활용할 수 있도록 하였다. 블록이 다수 배치됨에

따라 더 낮은 공기의 공급 조건에서 더 높거나 비슷한 전류 밀도를 보였다. 즉, 공기의 공급 유량을 줄이면서도 부하 전류의 감소없이 작동할 수 있기 때문에 연료전지 운전 시스템(balance of plant, BOP) 중 공기 공급 시스템에 필요한 컴프레서의 요구 동력의 비율을 감소할 수 있다. 이는 대 면적을 갖는 연료전지 스택으로 확장(scale up)될 경우 그 차이는 크게 증가할 것으로 예상된다. 다수의 블록을 직렬로 배치할 때, 직선의 연료전지에서는 수소와 산소의 공급 방향에 따라 블록 주위의 국부 전류 밀도의 경향이 달라질 수 있다. 본 연구는 단순한 직선의 연료전지 형상에서 운전으로 계산되었지만, 큰 면적이거나 복잡한 형태의 연료전지 분리판에 블록을 배치하는 연구에 도움이 될 것으로 사료된다.

감 사

이 논문은 2020년 울산대학교 연구비에 의하여 연구되었음.

References

1. R. O'Hayre, S. W. Cha, W. Colella, and F. B. Prinz, *Fuel Cell Fundamentals*, 3rd ed., 275-277, Wiley, NJ, USA (2016).
2. P. C. Okonkwo and C. Otor, A review of gas diffusion layer properties and water management in proton exchange membrane fuel cell system, *Int. J. Energy Res.*, **45**, 3780-3800 (2021).
3. P. M. Wilde, M. Mandle, M. Murata, and N. Berg, Structural and physical properties of GDL and GDL/BPP combinations and their influence on PEMFC performance, *Fuel Cells*, **4** (2004).
4. S. Flick, M. Schwager, E. McCarthy, and W. Mérida, Designed experiments to characterize PEMFC material properties and performance, *Appl. Energy*, **129**, 135-146 (2014).
5. N. Zamel and X. Li, Effective transport properties for polymer electrolyte membrane fuel cells - With a focus on the gas diffusion layer, *Prog. Energ. Combust. Sci.*, **39**, 111-146 (2013).
6. M. Marappan, K. Palaniswamy, T. Velumani, B. C. Kim, R. Velayutham, P. Shivakumar, and S. Sundaram, Performance studies of proton exchange membrane fuel cells with different flow field designs - review, *Chem. Rec.*, **21**, 663-714 (2021).
7. X. D. Wang, Y. Y. Duan, W. M. Yan, and X. F. Peng, Effects of flow channel geometry on cell performance for PEM fuel cells with parallel and interdigitated flow fields, *Electrochim. Acta*, **53**, 5334-5343 (2008).
8. X. D. Wang, G. Lu, Y. Y. Duan, and D. J. Lee, Numerical analysis on performances of polymer electrolyte membrane fuel cells with various cathode flow channel geometries, *Int. J. Hydrogen Energy*, **37**, 15778-15786 (2012).
9. A. Aiyejina and M. K. S. Sastry, PEMFC flow channel geometry optimization: A review, *J. Fuel Cell Sci. Technol.*, **9**, 011011 (2012).
10. H. Li, Y. Tang, Z. Wang, Z. Shi, S. Wu, D. Song, J. Zhang, K. Fatih, J. Zhang, H. Wang, Z. Liu, R. Abouatallah, and A. Mazza, A review of water flooding issues in the proton exchange membrane fuel cell, *J. Power Sources*, **178**, 103-117 (2008).
11. J. St-Pierre, D. P. Wilkinson, S. Knights, and M. L. Bos, Relationship between water management, contamination and lifetime degradation in PEFC, *J. New Mater. Electrochem. Syst.*, **3**, 99-106 (2000).
12. A. Mughal and X. Li, Experimental diagnostics of PEM fuel cells, *Int. J. Environ. Stud.*, **63**, 277 (2006).
13. X. G. Yang, N. Burke, C. Y. Wang, K. Tajiri, and K. Shinohara, Simultaneous measurements of species and current distribution in a PEFC under low-humidity operation, *J. Electrochem. Soc.*, **152**, 759-766 (2005).
14. P. J. Hamilton and B. G. Pollet, Polymer electrolyte membrane fuel cell (PEMFC) flow field plate: Design, materials and characterization, *Fuel Cells*, **10**, 489-509 (2010).
15. X. Li, I. Sabir, and J. Park, A flow channel design procedure for PEM fuel cells with effective water removal, *J. Power Sources*, **163**, 933-942 (2007).
16. L. Yu, G. Ren, M. Qin, and X. Jiang, Transport mechanisms and performance simulations of a PEM fuel cell with interdigitated flow field, *Renew. Energy*, **34**, 530-543 (2009).
17. J. H. Jang, W. M. Yan, H. Y. Li, and Y. C. Chou, Humidity of reactant fuel on the cell performance of PEM fuel cell with baffle-blocked flow field designs, *J. Power Sources*, **159**, 468-477 (2006).
18. H. W. Wu and H. W. Ku, The optimal parameters estimation for rectangular cylinders installed transversely in the flow channel in PEMFC from a three-dimensional PEMFC model and the Taguchi method, *Appl. Energy*, **88**, 4879-4890 (2011).
19. S. Barati, B. Khoshandam, and M. M. Ghazi, An investigation of channel blockage effects on hydrogen mass transfer in a proton exchange membrane fuel cell with various geometries and optimization by response surface methodology, *Int. J. Hydrogen Energy*, **43**, 21928-21939 (2018).

Authors

Seonghun Jo; B.Sc., Graduate Student, School of Chemical Engineering, University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea; lightish96@mail.ulsan.ac.kr

Junbom Kim; Ph.D., Professor, School of Chemical Engineering, University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea; jbkim@ulsan.ac.kr