

연료전지 수치해석을 이용한 등가회로 모델링 연구

오환영¹ · 최윤영¹ · 손영준^{1,2†}

¹한국에너지기술연구원 연료전지연구실, ²과학기술연합대학원대학교 수소에너지공학

A Study on the Fuel Cell Equivalent Circuit Modeling

HWANYEONG OH¹, YOON YOUNG CHOI¹, YOUNG-JUN SOHN^{1,2†}

¹Fuel Cell Research Center, Korea Institute of Energy Research, 152 Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34129, Korea

²Hydrogen Energy Engineering, University of Science and Technology, 217 Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34113, Korea

†Corresponding author :
yjsohn@kier.re.kr

Received 5 April, 2022

Revised 17 May, 2022

Accepted 7 June, 2022

Abstract >> Power converter are usually equipped for fuel cell power generation system to connect alternating current (AC) electric power grid. When converting direct current (DC) of fuel cell power source into AC, the power converter has a frequency ripple, which affects the fuel cell and the grid. Therefore, an equivalent circuit having dynamic characteristics of fuel cell power, for example, impedance, is useful for designing an inverter circuit. In this study, the current, voltage and impedance characteristics were calculated through fuel cell modeling and validated by comparing them with experiments. The equivalent circuit element values according to the current density were formulated into equations so that it could be applied to the circuit design. It is expected that the process of the equivalent circuit modeling will be applied to the actual inverter circuit design and simulated fuel cell power sources.

Key words : Fuel cell(연료전지), Inverter(인버터), Equivalent circuit(등가회로), Impedance(임피던스), Modeling(해석, 모델링)

1. 서론

수소에너지가 환경 친화적이고 재생 가능한 청정 에너지로 주목받는 시기를 지나서 최근에는 국가의 경쟁력을 좌우하고 무역과 경제의 주도권에도 영향을 미치고 있는 시대이다. 이러한 분위기 속에서 수소를 활용한 가장 중요한 발전 장치로써 연료전지의 중요성 또한 점점 높아지고 있다. 특히 탄소 중립과

RE100과 같은 국가 정책과 로드맵 수준에서 연료전지가 가지고 있는 무공해 전력 발전은 더욱 중요한 핵심 기술로 인정받고 있는 실정이다. 특히 산업 전반에서 사용되는 발전 수단으로 연료전지는 적은 면적을 차지하면서 안정적으로 수요 지향적인 전력을 공급해 줄 수 있다는 측면에서 향후 급격한 수요가 있을 것으로 기대되고 있다^{1,2)}.

이러한 발전용 연료전지는 기본적으로 단독 전력

원으로 사용되기보다는 기존의 전력망에 연결하여 사용하는 방식이 보다 보편화될 것으로 예상된다. 이때 연료전지와 전력망을 연결하는 핵심 구성품이 전력변환기, 즉 인버터이다. 인버터는 연료전지로부터 직류 전력을 받아서 교류의 전력망과 연결을 시키기 위해 직류의 전류와 전압을 조정하여 교류 전력망에 맞도록 변환을 시켜주는 과정을 거치게 되며 이때의 전력 변화 과정에서 인버터 측에 교류 성분이 연료전지와 직간접적인 영향을 줄 수 있음이 기존 연구에 보고되고 있다³⁾.

인버터 제작에 있어 전력 공급원으로써의 연료전지의 특성을 포함하여 설계를 할 때 이러한 교류 성분에 대한 연료전지의 특성과 반응을 포함한 모델이 필요하게 되며 이때 중요한 연료전지의 특성이 출력에 따른 전류, 전압 및 임피던스가 된다.

본 연구에서는 인버터 설계에서 기본적으로 필요한 연료전지의 핵심 특성인 전류, 전압 및 임피던스에 대한 모델링과 실제 회로 설계에 적용할 수 있는 등가회로를 도출하는 일련의 과정을 정리하여 기존의 회로 설계에 연계할 수 있는 연료전지 모델을 도출하였다.

특히 기존의 등가회로 연구는 연료전지 전류, 전압 성능을 선형적으로 단순화하거나 또는 실험적인 방법으로 취득하는 방식이 많아 비효율적인 경우가 있었는데 본 연구에서는 각 전류값에 따른 등가회로 인자값의 비선형성을 반영한 모델을 도출함으로써 보다 정확한 연료전지 특성을 효율적으로 나타낼 수 있도록 하였다.

2. 본 론

2.1 연료전지 모델링

본 연구에서는 고분자 전해질 연료전지(polymer electrolyte membrane fuel cell)의 전기화학반응과 저항성분 및 질량손실 성분 등을 반영할 수 있는 각각의 지배방정식을 모델링 식으로 적용하였다.

전통적인 Nernst equation 및 Butler-Volmer equa-

tion을 이용하여 equilibrium potential 및 전극에서의 electrochemical kinetics를 구현하였으며, 각 수식에 반응물 농도 값을 반영하여 질량손실에 대한 영향을 고려하였다. 저항성분으로는 분리판, 기체확산층, 촉매층에 대한 전기저항을 고려하였으며 핵심 성분인 membrane 이온전도도 및 촉매 이오노머 이온전도도를 식(1)과 같이 반영하였다⁴⁾. 다음 식에서 σ 는 이오노머 전도도(ionomer conductivity, S/m), λ 는 water content, $V\omega$, V_m 은 각각 물과 건조 membrane의 부피(m³/mol)이다.

$$\sigma = 116 \cdot \max\{0, f - 0.06\}^{1.5} \times \exp\left[\frac{E_a}{R} \left(\frac{1}{T_{ref}} - \frac{1}{T}\right)\right]$$

$$\text{where } f = \frac{\lambda V_w}{\lambda V_w + V_m} \quad (1)$$

이온전도도의 핵심인자인 water content (λ)는 membrane을 매개로 하는 electro osmotic drag 및 back diffusion에 의해 결정되며 식(2)를 이용하여 반영하였다⁵⁾. 또한 기체확산층, 촉매층 등 porous layer에서의 liquid water 전달은 Darcy's law에 따른 saturation level 및 capillary pressure 값을 기반으로 식(3)을 통해 계산하였다⁶⁾. 다음 식에서 s 는 응축되는 물의 비율(saturated water ratio), μ 는 물의 점도(viscosity, mPa·s), P_c 는 모세관압력(capillary pressure, N/m²)이다.

$$J_{H_2O} = 2n_{drag} \frac{i}{2F} \frac{\lambda}{22} - \frac{\rho_{dry}}{M_m} D_\lambda(\lambda) \frac{d\lambda}{dz} \quad (2)$$

$$j_s = - \frac{\kappa}{\mu V_w} \frac{\partial P_c}{\partial s} \nabla s \quad (3)$$

수소, 공기, water에 대한 기체의 전달은 molecular diffusion 및 Knudsen diffusion을 고려하였으며 water saturation (s) 증가에 따른 effective diffusivity 감소는 $(1-s)^3$ 에 비례하는 것으로 반영하였다⁷⁾. 열 해석 관점에서 전기화학 반응에 따른 joule heating을 추가하였고 water 증발-응축, water의 이오노머에 대한 흡착-탈착에 따른 heat sources를 반영함으로써 온도 변

화와 연계한 two-phase 관점에서의 열, 물질 전달 및 분포 현상을 포함하였다.

해석 툴로 COMSOL multiphysics를 이용하였으며

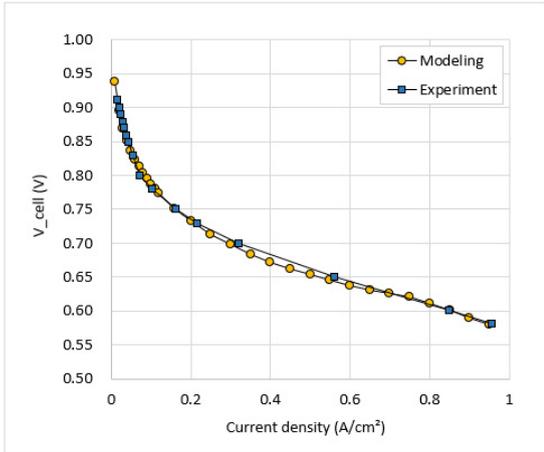


Fig. 1. Fuel cell current-voltage comparison between modeling and experiment

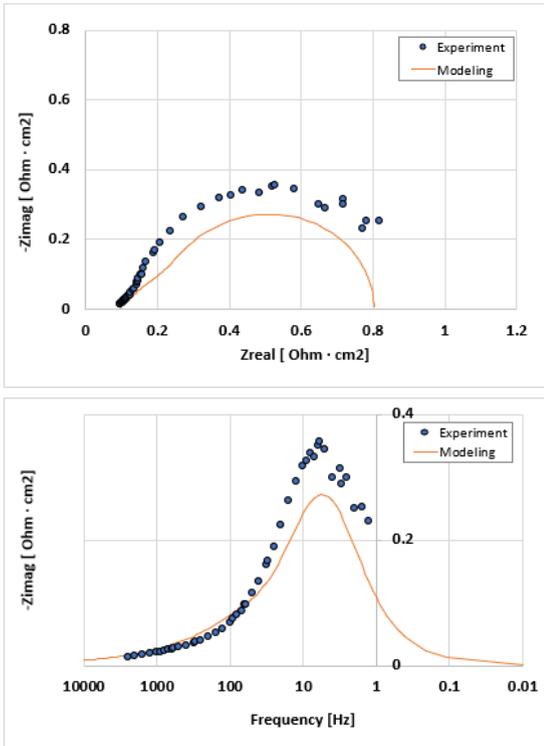


Fig. 2. Fuel cell impedance modeling and experiment comparison

stationary study를 통해 연료전지 전압-전류 곡선을, frequency domain perturbation study를 통해 연료전지 임피던스 plot을 구할 수 있다.

실제 연료전지 실험을 통해 얻은 전류-전압 및 임피던스 특성과 본 모델 해석을 통해 계산된 결과를 비교한 결과를 Figs. 1, 2에 나타내었다.

기존의 단위셀 연료전지의 성능 평가 결과와 비교하여 유사한 해석 결과가 나오고 있으며, 따라서 본 연구에 적용된 연료전지 모델링이 유효함을 확인할 수 있다. 모델링에 사용된 파라미터와 단위셀 운전 조건을 Table 1에 정리하였다.

2.2 연료전지 등가회로 인자 계산

연료전지 등가회로는 Fig. 3과 같이 각 저항 및 capacitor 성분을 반영하여 구성하였다. Ohmic 저항, cathode 전극에서의 이온노머 proton 전달 저항, charge transfer 및 산소 전달과 연관된 산소 환원 저항(oxygen

Table 1. Modeling parameter values and operating conditions

Parameter	Value
E_a (activation energy)	15 kJ/mol ⁽⁴⁾
V_m (equivalent volume of membrane)	534.87 cm ³ /mol ⁽⁴⁾
V_w (molar volume of liquid water)	18.4 cm ³ /mol ⁽⁴⁾
ρ_{dry} (dry density of Nafion)	1,970 kg/m ³ ⁽⁵⁾
M_m (Nafion equivalent weight)	1.1 kg/mol ⁽⁵⁾
κ (permeability of catalyst layer)	1E-15 m ²
P (Pressure)	1 atm
T (operating temp.)	60°C
λ_{ca} (stoi. at cathode)	2.0
λ_{an} (stoi. at anode)	1.2

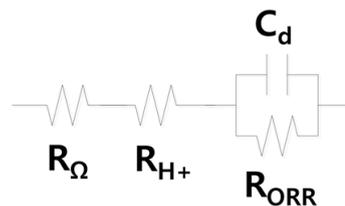


Fig. 3. Lumped equivalent circuit model

reduction reaction, ORR) 성분을 반영하여 lumped equivalent circuit을 구성하였다⁸⁾. 해당 circuit으로부터 유도되는 임피던스 성분에 대한 수식은 식(4)-(6)과 같다.

$$Z_{model} = Z_{real} + j \cdot Z_{imaginary} \quad (4)$$

$$Z_{real} = R_{ohm} + R_{H^+} + \frac{1}{\left(\frac{1}{R_{ORR}}\right)^2 + (w \cdot C_d)^2} \quad (5)$$

$$Z_{imaginary} = \frac{-w \cdot C_d}{\left(\frac{1}{R_{ORR}}\right)^2 + (w \cdot C_d)^2} \quad (6)$$

위의 식에서 w 는 특성주파수(characteristic frequency, Hz)이다.

연료전지의 특정한 전류값에서 임피던스의 모델링 결과와 위의 등가회로를 대응하게 되면 각 저항성분에 대한 값을 도출할 수 있게 된다.

Fig. 4는 2.1절 연료전지 모델을 이용한 임피던스 와 연료전지 등가회로에서 얻어지는 임피던스를 매칭한 예시이다. Fig. 4(a) nyquist plot의 각 X절편값으로부터 연료전지 등가회로에 대한 R_{ohm} , R_{H^+} , R_{ORR} 를 구할 수 있으며 Fig. 4(b) bode plot의 특성주파수 값으로부터 C_d 를 구할 수 있다.

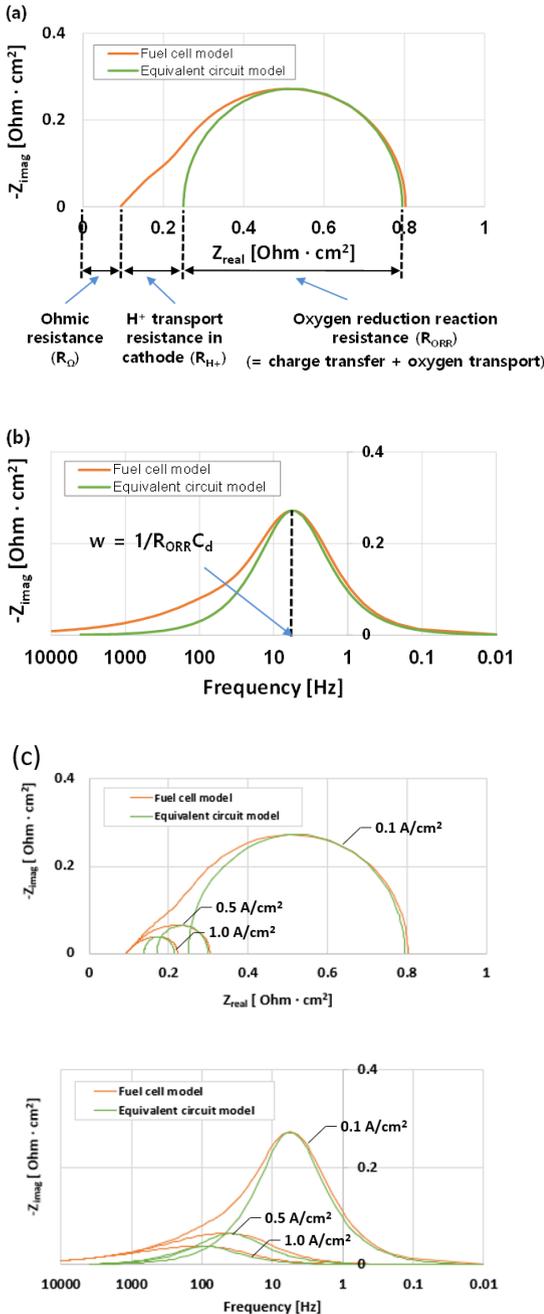


Fig. 4. Equivalent circuit model result compared to fuel cell model result at 0.1 A/cm². (a) Nyquist plots. (b) Bode plots. (c) Plots of each current density value.

3. 결과 및 고찰

연료전지 등가회로는 2.2절에서 언급한 등가회로 저항성분 관계식과 수치해석 모델에서 해석된 임피던스 결과를 비교하여 계산을 하였다. 임피던스 특성은 연료전지의 전압-전류 곡선의 위치에 따라 다른 경향을 보이게 되므로 전류밀도 값을 0.1-1.0 A/cm² 범위에서 0.1 간격으로 10개의 저항성분값을 도출하였다. 각 값을 Table 2에 정리하였다.

각 저항성분의 변화를 보면 ORR과 capacitor 성분은 저전류에서 고전류로 가면서 급격히 줄어드는 경향을 보이며 ohmic 저항과 이온전달 저항의 경우는 상대적으로 완만한 감소를 보이고 있는데, 이러한 경향은 연료전지의 전류-전압의 성능 감소 특성과 일치하여 잘 반영이 되고 있음을 확인할 수 있다. Fig. 5에 전류밀도값에 따른 저항성분 추세를 표시하였다.

각 저항성분을 등가회로에 적용하기 위해서 전류 값에 따른 저항성분 값의 관계식을 도출하였으며 각 각의 관계식은 다음과 같다.

Table 2. Parameters of fuel cell equivalent circuit elements

A/cm ²	R _Ω + R _{H+} (Ohm cm ²)	R _{ORR} (Ohm cm ²)	C _d (F/cm ²)
0.1	0.25	0.545	0.334
0.2	0.21	0.282	0.296
0.3	0.19	0.194	0.258
0.4	0.18	0.153	0.218
0.5	0.17	0.129	0.194
0.6	0.16	0.113	0.157
0.7	0.15	0.103	0.154
0.8	0.15	0.091	0.138
0.9	0.14	0.083	0.135
1.0	0.14	0.076	0.147

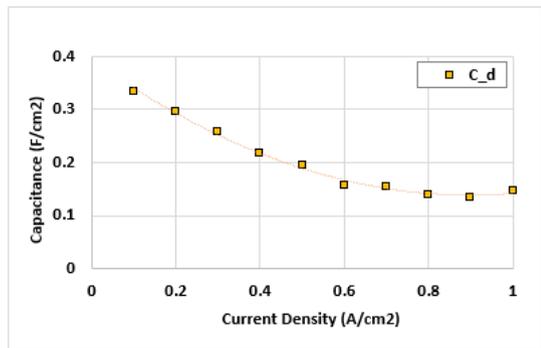
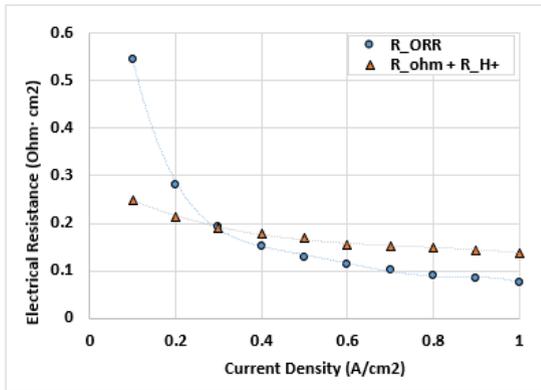


Fig. 5. Trend plots of fuel cell equivalent circuit elements according to the fuel cell current density

$$R_{ORR} = -9.9615 \times i^5 + 32.387 \times i^4 - 40.791 \times i^3 + 24.995 \times i^2 - 7.6507 \times i + 1.0962 \quad (7)$$

$$R_{ohm} + R_{H+} = -0.25991 \times i^3 + 0.58566 \times i^2 - 0.47883 \times i + 0.29060 \quad (8)$$

$$C_d = 0.31515 \times i^2 - 0.56721 \times i + 0.39373 \quad (9)$$

위의 관계식을 통해 각 저항성분을 전류밀도 i 의 함수로 나타낼 수 있으며 연료전지의 전류-전압 특성값에 의해 특정 전력 요구에 따른 전력값을 입력으로 받게 되면 이때의 전류, 전압값이 정해지고 이를 통해 해당 전류값에 대한 등가회로의 저항성분이 반영되므로 이에 대한 동적변화를 고려한 인버터의 회로 설계에 응용이 가능할 수 있게 된다.

4. 결론

1) 본 연구에서는 기존의 연료전지 지배방정식을 반영하고 여기에 막에서의 electro osmotic drag 및 back diffusion을 고려하고 기체확산층에서의 물의 증발, 응축 등의 열 및 유체 현상을 좀 더 세밀하게 고려하여 연료전지 실험과 유사한 연료전지 전류-전압 모델링 해석을 수행하였다.

2) 이러한 연료전지 수치해석을 바탕으로 COMSOL multiphysics의 frequency domain perturbation study를 응용하여 임피던스 특성값을 계산하였다.

3) 해석에 기반을 둔 전류-전압 특성과 임피던스 계산값을 연료전지 시험평가 결과와 비교하여 유사한 결과가 나오음을 확인하였고 이를 바탕으로 연료전지 등가회로의 인자값을 각 전류밀도 값에서 도출하였다. 이렇게 도출된 등가회로 인자값을 전류밀도에 의한 함수로 정리하여 등가회로 관계 함수로 반영하였다.

4) 기존의 연료전지용 인버터, 전력변환기의 설계를 고려한 연구 과정에서 위의 연료전지 등가회로를 적용하거나 실제 인버터의 제작과 시험평가 과정에서 연료전지를 모사하기 위한 전력 공급 모사 장치의 모사값 인가에도 본 등가회로의 인자값을 반영하여 적용하는 것이 가능할 것으로 사료되며 이에 대

한 추가 연구를 진행할 수 있을 것으로 본다.

5) 본 연구에서 진행된 등가회로는 저주파 구간에서 비교적 일치하는 결과를 보이고 있는데, 이는 앞서 언급한 바와 같이 전력 공급 모사 장치에 반영하기 위하여 최대한 간략한 등가회로를 채택한 것에 의한 것이며, 향후 연구에서 전구간의 주파수 영역에서 정확도가 높으면서도 가능한 간략한 등가회로를 구성할 수 있는 기법에 대한 것이 필요하리라 사료된다.

후 기

본 연구는 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제이다(No. 20193010032490, No. 20203010030010).

References

1. Y. D. Lee, J. Y. Kim, D. J. Yoo, H. Ju, and H. Kim, "Review of research trend in fuel cell: analysis on fuel-cell-related technologies in electrode, electrolyte, separator plate, stack, system, balance of plant, and diagnosis areas", *Trans Korean Hydrogen New Energy Soc*, Vol. 31, No. 6, 2020, pp. 530-545, doi: <https://doi.org/10.7316/KHNES.2020.31.6.530>.
2. W. Y. Lee, M. Kim, H. Oh, Y. J. Sohn, and S. G. Kim, "A review on prognostics of polymer electrolyte fuel cells", *Trans Korean Hydrogen New Energy Soc*, Vol. 29, No. 4, 2018, pp. 339-356, doi: <https://doi.org/10.7316/KHNES.2018.29.4.339>.
3. W. J. Choi, "A study on the effects of inverter ripple currents to the proton exchange membrane fuel cell stack by using on equivalent impedance model", *Journal of the Korean Institute of Illuminating and Electrical Installation Engineers*, Vol. 18, No. 6, 2004, pp. 230-237, doi: <https://doi.org/10.5207/JIEIE.2004.18.6.230>.
4. R. Vetter and J. O. Schumacher, "Free open reference implementation of a two-phase PEM fuel cell model", *Computer Physics Communications*, Vol. 234, 2019, pp. 223-234, doi: <https://doi.org/10.1016/j.cpc.2018.07.023>.
5. R. O'hayre, S. W. Cha, W. Colella, and F. B. Prinz, "Fuel cell fundamentals", 2nd ed. John Wiley & Sons, USA, 2009.
6. H. Oh, J. Park, K. Min, E. Lee, and J. Y. Jyoung, "Effects of pore size gradient in the substrate of a gas diffusion layer on the performance of a proton exchange membrane fuel cell", *Applied Energy*, Vol. 149, 2015, pp. 186-193, doi: <https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2015.03.072>.
7. T. Rosen, J. Eller, J. Kang, N. I. Prasianakis, J. Mantzaras, and F. N. Büchi, "Saturation dependent effective transport properties of PEFC gas diffusion layers", *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 159, No. 9, 2012, pp. F536-F544, doi: <https://doi.org/10.1149/2.005209jes>.
8. J. R. Kim, J. S. Yi, and T. W. Song, "Investigation of degradation mechanisms of a high-temperature polymer-electrolyte-membrane fuel cell stack by electrochemical impedance spectroscopy", *Journal of Power Sources*, Vol. 220, 2012, pp. 54-64, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2012.07.129>.