



운전조건이 PEM 수전해 셀의 성능에 미치는 영향

장상엽 · †김재동* · 박진모 · 소영석

한국가스공사 가스연구원 신사업기술연구소, *범한퓨얼셀 수소연료전지부
(2024년 1월 15일 접수, 2024년 3월 26일 수정, 2024년 3월 26일 채택)

Influence of Operation Conditions on the Performance of PEM Water Electrolysis

Sangyup Jang · †Jaedong Kim* · Jinmo Park · Youngseuk So

Hydrogen technology research center, Gas research institute, KOGAS, Ansan 15328, Korea

*Hydrogen and Fuel Cell Division, Bumhan Fuel Cell, 68, Magokjungang 8-ro, Seoul, Korea

(Received January 15, 2024; Revised March 26, 2024; Accepted March 26, 2024)

요약

재생에너지 자원이 풍부한 제주도에서 수전해 시스템을 활용하여 그린수소를 생산하는 실증단지를 준비 중이며, 수전해 시스템의 장기 운영시 상황을 검토하기 위하여, PEM 수전해 셀을 가속시험평가 하여 수전해 셀의 내구성을 검토하였고, 제주도 풍력기반의 전력패턴을 적용하였을 때 수전해 셀의 내구성을 검토하였다. 가속시험평가(저전류-고전류 반복 인가)를 800시간 진행한 후, PEM 수전해 셀의 성능이 최대 10%, 운전조건에서 5.5% 감소되었으며, 임피던스 분석결과 PEM 수전해 셀의 Ohmic 저항보다 전극의 분극저항이 크게 증가한 것을 확인할 수 있다. 그리고 제주도의 풍력패턴을 적용하여 내구성평가를 진행한 경우, PEM 수전해 셀의 성능이 최대 1.6%, 운전조건에서 1% 미만의 성능감소를 보여주었으며, 임피던스 결과 Ohmic 저항 및 전극의 분극저항의 변화가 작은 것을 알 수 있다.

Abstract - Green Hydrogen demonstration complex is under conduction in Jeju island which is rich in renewable energy resources and will produces green hydrogen using a water electrolysis systems. In order to check durability of long-term operation, AST(accelerated stress test) was applied and the power pattern based on Jeju Island's wind power was applied. After 800 hours of repeated application of low current and high current, the performance of the PEM water electrolysis cell was reduced by up to 10% and by about 5.5% in operating conditions. As the result of impedance analysis, it can be seen that the electrode polarization resistance greatly increased than ohmic polarization resistance. In addition, when the durability evaluation was conducted by applying the wind power pattern of Jeju Island, the performance of the PEM water electrolysis cell showed up to 1.6% and a decrease of less than 1% in operating conditions. As a result of the impedance, it can be seen that the change of ohmic resistance and electrode polarization resistance is small.

Key words : hydrogen, PEM, AST, ohmic polarization resistance, electrode polarization resistance, renewable energy, hydrogen production

I. 서론

과거 수십년간 과도한 화석연료의 사용은 대기오

염과 그린하우스 가스방출을 증가시켜왔다. 최근에 환경문제가 중요한 이슈로 부각되면서, 전세계적으로 바람, 태양광, 조력 에너지 같은 환경문제가 없는 재생에너지의 사용이 광범위하게 사용되고 있다. 이와 관련하여 수소는 카본-프리 에너지이고 효과적인 에너지 캐리어로서, 매력적인 해결책으로 생각되고

†Corresponding author:nature88@hanmail.net
Copyright © 2024 by The Korean Institute of Gas

있다. [1] 그리고 수소는 재생에너지의 예측불가능하고 일정하지 않은 에너지 생산을 저장하기 위한 가장 적합한 에너지로 기대되고 있다. [2, 3] 수소를 생산하는 방법에는 천연가스 개질, 바이오메스 가스화, 석탄 가스화, 수전해 등 여러 가지 방법이 있다. [4, 5] 수전해는 수소를 생산하는 효과적인 방법중에 하나로, 특히 PEM 수전해는 고효율, 콤팩트 디자인, BOP의 단순성, 빠른 반응성, 넓은 동적 운전조건 등으로 상대적으로 기술적인 잠재력을 보유하고 있다. [6-8]

국내에서도 재생에너지 및 재생에너지를 활용하여 수소를 생산하는 기술에 대하여 많은 관심을 기울이고 있으며, 특히 제주도는 재생에너지의 발전 비중이 다른 지역에 비하여 높아, 2020년 기준 재생에너지 발전량 비중이 16% 수준이며 [9], 풍력발전 출력제한도 연간 77회 이상으로 보고되고 있다. [10, 11] 제주도의 경우, 태양광과 풍력이 다른 지역에 비하여 높아, 재생에너지의 전력을 활용하여 수소를 생산하는 수전해 기술은 미이용 전력을 대용량으로 전환할 수 있는 장점이 있다 [12-16].

미국 및 유럽에서는 수전해 기술이 앞서있어, 알카라인 수전해 및 PEM 실증이 먼저 진행되었고, 국내의 경우에는 제주도 상명에서 500kW 국내 알카라인 수전해 시스템이 실증된 사례가 있다.

현재 제주도 행원지역에 수전해를 활용한 수소 생산단지를 구축중이며, 수소생산을 준비하고 있다. 제주도 행원지역의 풍력을 기반으로 수전해 시스템에서 수소를 생산하고, 운영할 예정으로 수전해 시스템을 운영할 예정으로 수전해 시스템의 장기운영시 수전해 시스템의 핵심부품인 셀의 내구성 및 특성을 검토하는 것이 필요하다. 그래서 본 논문에서는 수전해 셀의 전기화학적 특성, 가속시험평가에 따른 수전해 셀의 내구성, 풍력기반의 전

력패턴을 적용하였을때의 셀 내구성을 검토하였다.

II. 실험방법

PEM 수전해 셀을 성능 및 내구성 평가를 위하여, 관련 장비를 구축하여 실험을 수행하였다. PEM 수전해 셀을 운영하기 위하여 초순수 공급, 전기공급, 공기/질소 공급, 물 배수, 가스 배기등의 유틸리티를 구축하여야 된다. 초순수장치를 연결하여 PEM 수전해 셀에 초순수를 공급하였고, 전기공급을 위하여 배전반 공사를 하였고, 생성된 수소 및 물을 배출하기 위해 배기 및 배수 유틸리티를 설치하였고, 공압밸브 및 질소퍼지를 위하여 공기 및 질소를 공급하였다. Fig.1와 같이 PEM 수전해 셀을 운영하는 평가장치(Acrolabs) 및 셀특성을 분석하는 임피던스(Biologics)를 구축하여 전기화학평가를 진행하였다. 임피던스 측정시 주파수 범위는 100kHz~10MHz 이다. 수전해 셀(보야스 에너지)은 nafion 115를 전해질로 사용하고 MEA의 전극면적은 25cm² 으로, anode는 IrO₂(2~4mg/cm²) 이고 cathode는 Pt/C(0.4mg/cm²) 이다. 그리고 전극면적 25cm²의 PEM 수전해 셀을 다양한 조건에서 가속평가실험을 하였고, 제주도 풍력패턴을 적용하여 각각 실험을 진행하였다.

III. PEM 수전해 시스템 도입

제주도 행원단지에서는 2MW의 알카라인 수전해 시스템, 1MW PEM 수전해 시스템, 300kW PEM 수전해 시스템을 운영하여, 수소를 생산/저장하고, 수소스테이션에 수소를 공급하여 수소버스를 운영할 예정이다. 본 연구에서는 한국가스공사가 Plug Power사의 1MW PEM 수전해 시스템을 도입하여 구축/운영할 예정으로, Plug Power사의 시스템은 아래와



Fig. 1. Evaluation device of water electrolysis cell & stack



Fig. 2. Plug-power's water electrolysis system to be introduced in Korea [13]

같이 2층 구조로 되어 있다.

PEM 수전해 시스템을 도입하기 위해 수소법(KGS AH271)을 통과하여 도입되어야 되고, 국내 기업은 수소법에 의해 10bar 이하의 압력으로 수소생산이 가능하도록 시스템을 개발하고 있으나, 국외시스템은 30~45bar 압력으로 생산하고 있고[18], 본 과제에서 도입되는 Plug Power 시스템의 수소생산압력은 40bar이다.

Plug Power 시스템의 하단부는 전력변환장치, 스택, 수소정제장치 등이 있고, 상단부는 water filter 시스템 및 공기조기 등으로 구성되어 있다.

IV. 셀의 온도 및 유량에 따른 특성

수전해 셀의 온도에 따른 성능평가를 위하여, nafion 115를 기반으로한 셀을 활용하여 60°C, 70°C, 80°C에서 평가를 진행하였다. 수전해의 온도에 따른

성능평가는 정전류법을 활용하여 셀의 I-V 특성을 구하였고, Fig. 3에 나타난 것처럼 온도가 60°C에서 80°C로 증가함에 따라 성능이 증가함을 확인할 수 있다.

PEM 수전해 셀의 온도에 따른 성능증가를 분석하기 위하여, 임피던스를 측정하여 셀의 ohmic 저항과 분극 저항을 구분하고자 하였다. 임피던스 Nyquist Plot의 반원의 X축 시작점까지가 ohmic 저항이고 Nyquist plot의 반원의 반지름이 cathode와 anode의 전극분극저항과 관련되어 있다. [19] 셀 온도가 60°C에서 80°C로 증가할수록 Ohmic 저항과 cathode와 anode의 전극분극저항도 감소하는 것으로, 온도증가에 따라 nafion의 저항이 감소하고, 전극반응의 활성이 증가하여 Ohmic 저항과 전극의 분극저항이 감소하는 것을 확인할 수 있다.

PEM 수전해 셀의 anode에 초순수를 공급하여 물이 전기분해되고, H⁺ 이온이 nafion을 통하여 전도

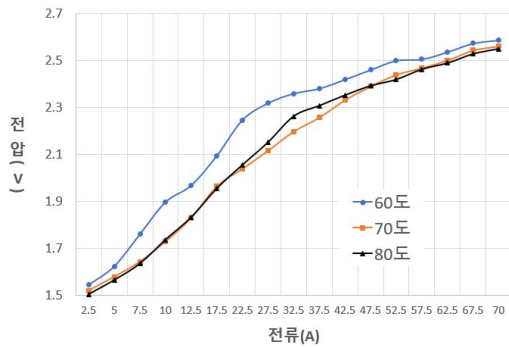


Fig. 3. I-V curves of PEM electrolysis cell at temperature range of 60-80°C.

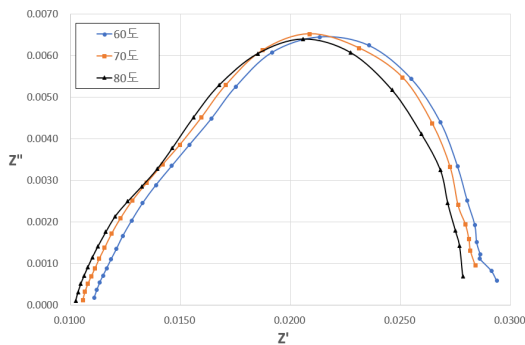
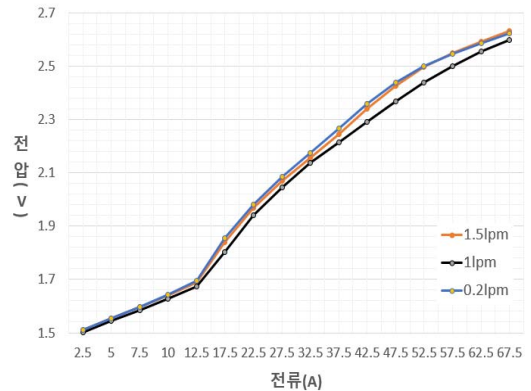
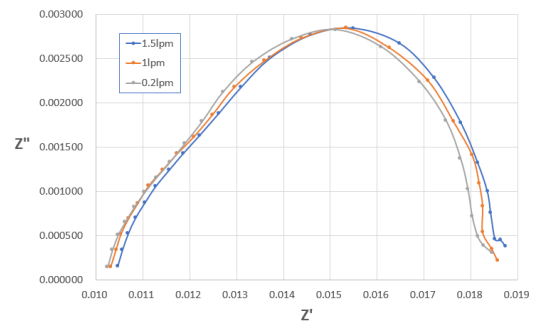


Fig. 4. Impedance results of PEM electrolysis cell at temperature range of 60-80°C.



(a) I-V test results



(b) Impedance test results

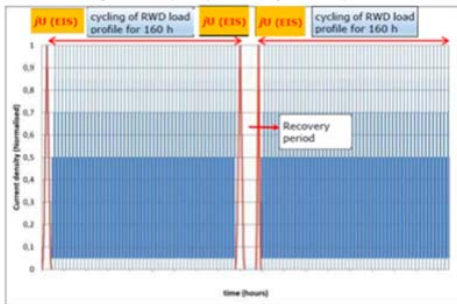
Fig. 5. I-V and Impedance results of PEM electrolysis cell at water flow rate range of 0.2lpm-1.5lpm

되어 cathode에서 수소가 생성된다. anode에 초순수 공급의 조건을 확인하기 위하여, anode의 초순수 공급조건을 0.2LPM, 1LPM, 1.5LPM로 변화시켜 I-V 평가와 임피던스 평가를 하였다.

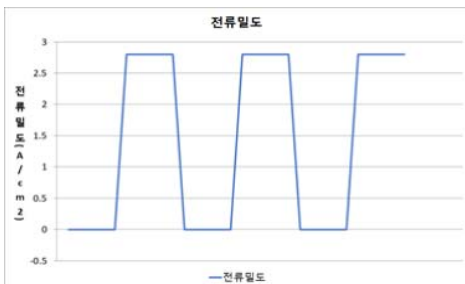
anode의 공급유량 0.2LPM, 1LPM, 1.5LPM에 따른 I-V 평가 결과, 0.2LPM과 1.5LPM에서 성능이 동일하고 1LPM에서 성능이 약간 떨어지는 결과로 유량에 따라 성능이 유사한 것으로 판단되고, 임피던스결과도 ohmic 저항과 cathode, anode 전극 분극 저항도 거의 유사한 것으로 확인된다. 특히 임피던스 측정결과에서 mass transfer에 의한 저항이 발견되지 않아, 0.2LPM 이상의 조건에서 초순수를 공급하면 될 것으로 판단된다.

V. PEM 수전해 셀 가속시험평가

국내의 자료를 참고하여 수전해 가속시험평가 프로토콜을 구축을 하였고, 아래의 그림은 유럽의 dynamic load degradation test protocol로 저전류와 고전류를 반복적으로 인가하여 PEM 수전해 셀의 degradation을 유도하는 방법이다[20]. 이와 유사한 방법으로



(a) Degradation test protocol [20]



(b) Input current signal of AST(accelerated stress test)

Fig. 6. degradation test protocol and Input current signal of low current - high current repeat signal

본 연구에서도 저전류와 고전류를 교차로 인가하여 PEM 수전해 셀의 가속시험평가를 진행하였다.

PEM 수전해 셀의 Activation을 충분히 진행한 후 저전류와 고전류를 반복적으로 인가하여 매 100시간 가속시험 후 I-V평가를 하여 총 800시간 가속시험평가를 진행하였으며, 수전해 셀의 I-V 평가는 정전류 방식으로 저전류에서 고전류로 평가를 진행하였다. 보라색은 초기 I-V 평가 결과이고, 고동색은 800시간 후 I-V 평가결과로 가속시험을 진행할수록 수전해 셀의 성능이 감소하는 것을 확인할 수 있다.

800시간의 가속시험을 진행함에 따라 저전류 구간에서는 셀의 성능감소가 적으나 중간전류구간에서는 셀의 성능감소가 상대적으로 크게 나타났으며,

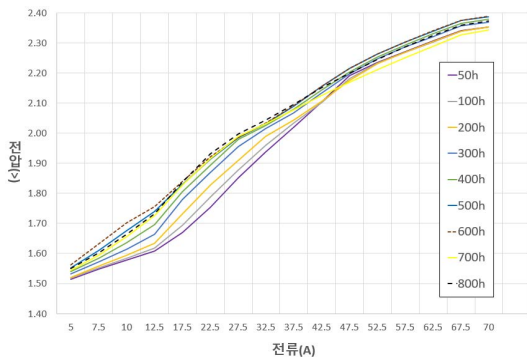


Fig. 7. I-V curves of PEM electrolysis cell during ageing test(low current - high current repeat signal)

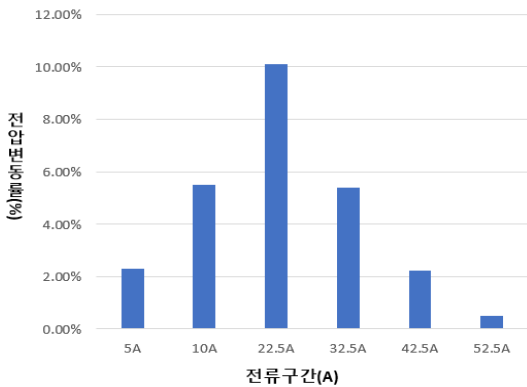


Fig. 8. Voltage change of PEM electrolysis cell after 800hr ageing test.(low current - high current repeat signal)

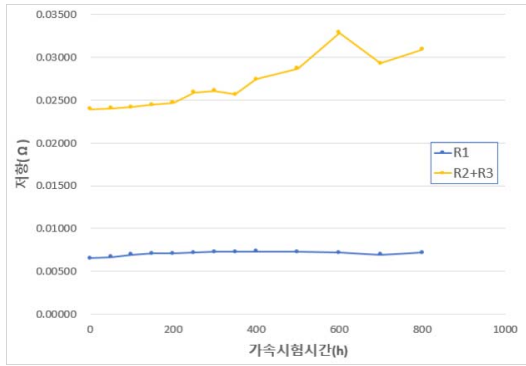


Fig. 9. Impedance results of PEM electrolysis cell during the ageing test(low current - high current repeat signal)

고전류구간에서는 셀의 성능감소가 다시 감소함을 알 수 있다. 저전류 구간인 5A와 10A 구간에서 전압의 변동율은 2.2%, 5.8% 정도이나 22.5A 구간에서는 전압변동율이 10% 정도로 증가하였고, 32.5A와 42.5A의 구간에서 전압변동율은 5.5%와 2.2%이다.

800시간의 가속시험평가를 진행하는 동안, PEM 수전해 셀의 ohmic 저항 및 전극(anode, cathode)의 분극저항의 변화를 확인하기 위하여 I-V 평가 이외에 임피던스평가도 진행하였다. R1은 PEM 수전해 셀의 Ohmic 저항으로 멤브레인의 이온전도도, 전극의 전도도와 관련된 저항으로 800시간의 가속시험평가 이후에도 약간의 저항증가가 관찰됨을 확인하였다. 그러나 전극(anode, cathode)의 분극저항의 값인 R2+R3의 경우 약 30% 정도의 저항증가가 관찰되는데, 이것은 anode의 전기화학반응에 중요한 역할을 하는 Ir의 용해 및 침적, 금속양이온 피독, 라디칼(HO·, HO₂)에 의한 전극의 아이노도 열화등과 관련 것으로 보고되고 있다. [21]

결과적으로 800시간의 가속시험평가의 I-V 결과 및 임피던스 결과, 저전류-고전류의 반복패턴의 인가를 통하여 전극의 성능감소가 크게 발생하였다. 이에 따라 수전해의 작동전압인 1.9V~2.0V에서 5.5% 이상의 성능감소가 발생하였음을 알 수 있고, 추후 실험을 통하여 일반적인 셀운영과 가속평가의 비교를 통하여 가속평가가 미치는 영향을 분석할 예정이다.

VI. 제주도 풍력발전 패턴을 활용한 PEM 수전해 셀 평가

재생에너지와 연계하여 수전해 시스템을 운영하

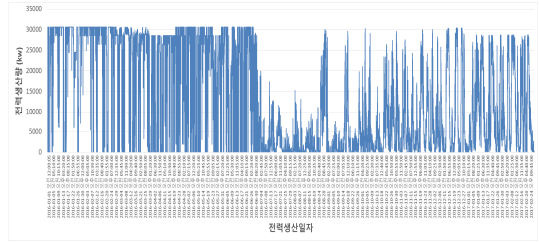


Fig. 10. Wind power pattern of Jeju Island during a year

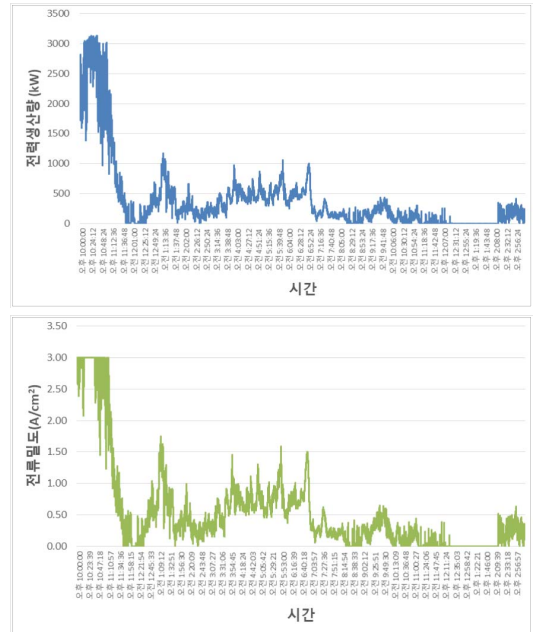


Fig. 11. Input current signal based on wind power of jeju island.

였을 때의 영향을 분석하기 위해, 제주도의 풍력발전 패턴을 분석하였다. 월간 패턴 및 연간 패턴 분석 결과, 동절기에 최대 3MW급의 전력 생산량을 유지하며 하절기엔 상대적으로 낮은 전력 생산량을 보임이 확인된다. 하절기에는 상대적으로 풍속이 낮아지며, 발전 가능 풍량에 도달하지 못하는 현상을 나타내는 것으로 보여, 향후 동/하절기 별 발전량의 변화를 반영하여 최적의 수전해 그린수소 생산량을 산정해야 할 것으로 판단된다.

수전해 수소 생산 시스템의 풍력 연계 시의 수소 생산 시나리오를 분석하기 위해, 풍력발전기 한 호기의 초단위 전력 생산 패턴을 분석하였고, 최소 0MW, 최

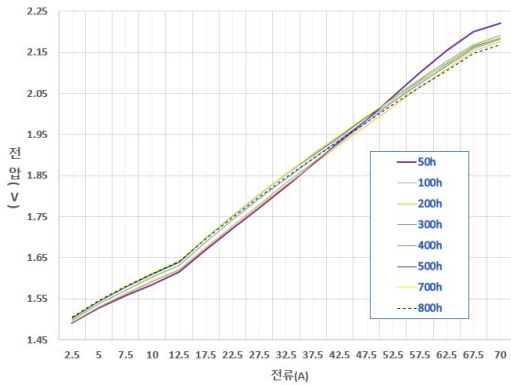


Fig. 12. I-V curves of PEM electrolysis cell during ageing test(Input current signal based on wind power)

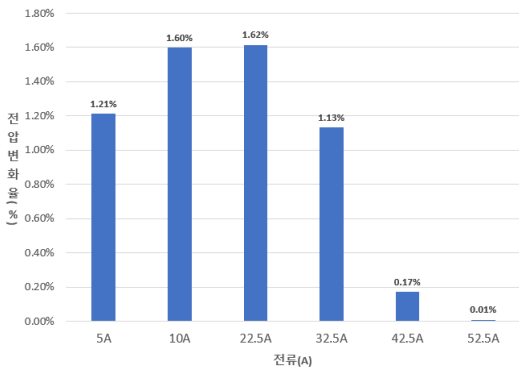


Fig. 13. Fig. 8. Voltage change of PEM electrolysis cell after 800hr ageing test. (Input current signal based on wind power)

대 3MW까지의 발전량 변화를 수전해 그린수소 생산 시스템에 인가하기 위해, 시스템의 운영 가능 부하(10%~100%) 범위에서 2MW 수전해기를 설치했다는 가정 하에 발전량 및 운영율을 분석하였다.

상기에서 도출한 운영율을 바탕으로 실험을 위한 전류밀도 및 전류값을 산출하였고, 수전해 시스템의 인가 가능 전류밀도 범위(0.3~3A/cm²)를 고려하여 최종적으로 풍력 연계 운전 시 초단위 전력 패턴모사 시나리오를 완성하여 실험을 하였다.

PEM 수전해 셀의 안정화상태 유지 후 풍력기반의 발전패턴을 인가하여 100시간마다 I-V 평가를 하여 총 800시간의 평가를 진행하였으며, 결과에서 알 수 있듯이 최대 1.62% 정도의 성능감소를 보여 가속 시험평가와 달리 성능감소가 낮게 평가되었다.

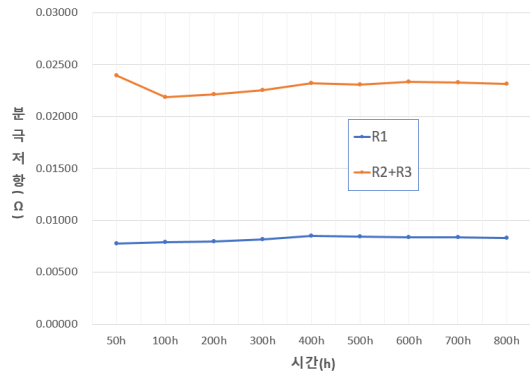


Fig. 14. Impedance results of PEM electrolysis cell during the ageing test(Input current signal based on wind power)

또한 수전해 스택의 작동전압인 1.9~2.0V 사이의 조건에서는 1% 미만의 전압변화율을 보여주어, 가속 시험평가결과와 큰 차이를 보임을 알 수 있다.

그러나 1년을 8,760시간으로, 풍력패턴을 PEM 수전해에 인가하였을 때 800시간에 1% 이하의 성능감소는 작은 변화로 볼 수 없다고 판단되고, 전력변환기에 의한 풍력전력패턴의 정류를 통하여 스택에 전력을 인가하는 것이 수전해 스택을 장기 운영하는 효과적인 방법이라 판단된다.

Fig. 14는 풍력기반의 발전패턴을 PEM 수전해 셀에 인가하였을 때, 임피던스값의 변화를 나타내는 값으로 파란색의 R1은 Ohmic 저항이고 주황색의 R2+R3는 전극과 관련된 저항이다. Fig 12의 I-V 결과가 크게 변화하지 않은 것처럼, 파란색의 R1(Ohmic 저항)과 주황색의 R2+R3(전극의 저항)이 크게 변화하지 않은 것을 알 수 있다. 즉 풍력패턴을 PEM 수전해 셀에 인가하였을 때, PEM 수전해 셀의 Ohmic 저항과 전극의 저항이 크게 변화하지 않아, 결과적으로 성능감소가 작게 나타난 것으로 판단할 수 있다.

VII. 결론

본 연구에서는 제주도 행원지역의 풍력을 기반으로 수전해 시스템에서 수소를 생산하고, 수전해 시스템을 운영할 예정으로 수전해 시스템의 장기 운영시 수전해 시스템의 핵심부품인 셀의 내구성 및 특성을 검토하고자 하였다. PEM 셀의 온도(60, 70, 80℃) 및 초순수 유량에 따라 I-V 및 임피던스 평가를 진행하여, 셀 운영조건등을 확립하였고, 온도 증가에 따라 ohmic 저항 및 전극의 분극저항이 감소하는 것을 확인하였다. 국내의 참고자료를 분석

하여 PEM 수전해 셀의 가속시험평가 방법을 구축하였고, 저전류-고전류를 반복적으로 인가하는 방식으로 가속시험평가를 진행하였다.

가속시험평가를 800시간 진행한 후 셀의 성능감소가 두드러졌으며, 전압변동율이 최대 10% 이상이며, 수전해 작동전압인 1.9~2.0V에서는 5.5% 이상의 성능감소가 발생하였다. 임피던스 분석결과, 800시간 가속시험평가후에 PEM 수전해 셀의 멤브레인 전도도등과 관련된 Ohmic 저항보다 전극의 분극저항이 크게 증가한 것을 확인할 수 있었다. 또한 제주도의 풍력이 스택에 적용되었을 경우, 셀의 성능감소를 확인하기 위해 제주도 풍력패턴을 적용하여 셀 성능감소를 평가하였고 성능감소가 최대 1.6% 이고 스택의 작동전압 조건(1.9~2.0 V)에서 1% 미만의 성능감소를 보였으며, 임피던스의 Ohmic 저항과 전극분극저항의 변화가 크지 않음을 알 수 있다.

공사에서는 1MW PEM수전해 시스템이 구축될 예정으로, PEM 수전해 셀의 내구성 및 풍력기반의 성능시험결과를 PEM 수전해 시스템의 장기운영의 기반자료로 활용할 예정이다.

감사의 글

본 연구는 산업통상자원부(MOTIE)와 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 그린수소생산 및 저장시스템 기술개발(과제번호: 20208801010010)사업으로 수행되었습니다.

REFERENCES

- [1] Barbir, F., "PEM electrolysis for production of hydrogen from renewable energy sources", *Sol Energy*, 78(5), 661-669, (2005) .
- [2] Kumer, H., Bharti, B., Aslam, S., Sagar, R., et al, "Structural tailoring of molybdenum disulfide by argon plasma for efficient electrocatalysis performance", *J.Energy Res*, 44(9), 7846-7854, (2020)
- [3] Rosen, M., Koochi-Fayegh, S., "The prospects for hydrogen as an energy carriers : an overview of hydrogen and hydrogen energy systems", *Energy, Ecol. Environ.* 1, 10-29, (2016)
- [4] Carmo, M., Fritz, D.I., Stolten, D., "A comprehensive review on PEM water electrolysis", *Int. J. Hydrogen Energy*, 38(12), 4901-4934, (2013)
- [5] Acar, C., Dincer, I. "Comparative assessment of hydrogen production methods from renewable and non-renewable sources", *Int. J. Hydrogen Energy*, 39(1), 1-12, (2014)
- [6] Ayers, K.E., Capuano, C., Anderson, E.B., "Recent advances in cell cost and efficient for PEM-based water electrolysis, *ECS Trans*", 41(10), 15-22, (2012)
- [7] Ayers, K.E., Capuano, C., Anderson, E.B., "Hydrogen infrastructure challenges and solution", *ECS Trans*, 41(46), 75-83, (2012)
- [8] Ayers, K.E., Capuano, C. Anderson, E.B., et al, "Research Advances towards low cost, high efficiency PEM electrolysis", *ECS Trans*, 33(1), 3-15, (2010)
- [9] Jeju report, Carbon Free Island 2030, (2019)
- [10] Korea Power Exchange (KPX), Electric Power Statistics Information System, (2021)
- [11] Jeon, W.Y., Kim J.Y., Lee S.W., "Establishing an efficient low-carbon power system by reducing curtailment of renewable energy using ESS, DOI: <https://doi.org/10.15531/KSCCR.2022.13.1.001>
- [12] Gorre, J., Ruoss, F., Karjunen, H., Schaffert, J., and Tynjälä, T., "Cost benefits of optimizing hydrogen storage and methanation capacities for Power-to-Gas plants in dynamic operation", *Appl. Energy.*, 257, 113967, (2020)
- [13] Blanco, H., and Faaij, A., "A review at the role of storage in energy systems with a focus on Power to Gas and long-term storage", *Renew. Sustain. Energy Rev.*, 81(1), 1049-1086, (2018).
- [14] FCH JU, Commercialization of energy storage in Europe, Final report (2015).
- [15] Buttler A., Spliethoff, H., "Current status of water electrolysis for energy storage, grid balancing and sector coupling via power-to-gas and power-to-liquids: A review", *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 82(3), 2440, (2018).
- [16] Park J.H., Kim C.H., Cho H.S., Kim S.K., Cho W.C., "Techno-economic analysis of green hydrogen production system based on renewable energy sources", *Trans. of Korean Hydrogen and New Energy Society*, 31(4), 337~344 (2020)
- [17] Plug-power electrolyzer spec sheet, <https://plugpower.com> (2022)
- [18] Jang, S.Y., Kim, J.D., Kim, D.M., Park, J.M., So, Y.S., "Introduction for foreign PEM systems and it's field test plan linked to renewable energy in Jeju island", *KIGAS* 27(1), 33-37, (2023)
- [19] Lettenmeier, P., Wang, R., Abouatallah, R., Helmly,

S., Friedrich K.A., et al, "Durable Membrane Electrode Assemblies for Proton Exchange Membrane Electrolyzer Systems Operating at High Current Densities", *Electrochimica Acta*, 210, 502-511, (2016)

[20] Tsotridis, G., Pilenga, A., *EU harmonised protocols for testing of low temperature water electro-*

lysers, Publications Office of the European Union, 88-89, (2021)

[21] French, S., Fouda-Onana, F., Serre, G., Thoby, D., et al., "Influence of the operation mode on PEM water electrolysis degradation", *Hydrogen Energy*, 44(57), 29889-29898, (2019)