

중성자속 및 선형 흡수 계수 보정을 고려한 중성자영상법을 이용한 PEMFC 내의 물 배출 특성에 관한 실험적 연구

김태주* · 김종록* · 김무환† · 심철무**

Experimental Approach for Water Discharge Characteristics at PEMFC by using Neutron Imaging Technique considered Neutron Flux and Linear Attenuation Coefficient of Thermal Neutron Correction at NRF, HANARO

TaeJoo Kim*, JongRok Kim*, MooHwan Kim†, CheulMuu Sim**

Key Words : Linear Attenuation Coefficient(선형흡수계수), PEMFC(연료전지), Neutron Imaging Technique(중성자영상법), Neutron Flux(중성자속)

Abstract

The neutron imaging technique was used to investigate the water discharge characteristics at PEMFC. Prior to investigation of water discharge characteristics, the linear attenuation coefficient for water at Neutron Radiography Facility (NRF) was calibrated. The feasibility test apparatus was consisted of pressurized air and water in order to simulate the actual operating PEMFC. The feasibility tests have been performed at 1-parallel serpentine type with 100 cm² active area and different air flow rate (1, 2, and 4 lpm). The total water volume variations at each condition were calculated from the neutron images. The water at channel is well discharged as soon as supplying the pressurized air into the PEMFC. However, because the water at MEA isn't removed the total water volume is constant after 150. Therefore more effective method is needed in order to discharge water at MEA, and the neutron imaging technique is helpful for it.

기호설명

t	두께	[mm]
Φ	중성자속	[n/cm ² s]
Σ	중성자 선형 흡수 계수	[mm ⁻¹]

1. 서론

수소와 산소를 연료로 사용하는 연료전지는 에너지 변환 효율이 높고 환경 친화적이기 때문에 차세대 전력원으로 각광 받고 있다. 연료전지 성

능 향상을 위한 연구가 전세계적으로 활발하게 진행 중이다[1]. 연료전지 운전 과정에서 생기는 물은 전해질 내에 존재하는 양에 따라 수소 이온 전도성과 연료 공급에 크게 영향을 미치기 때문에 연료전지 시스템 최적화의 중요한 인자중의 하나이다[2]. 특히, 자동차 동력원으로 주목 받는 PEMFC의 경우 운전 중 발생한 물이 성능에 많은 영향을 미치기 때문에 적절한 물관리(Water Management)를 위해서는 PEMFC 내부 가시화는 필수적이다. 그러나 불투명 금속막을 갖는 대부분의 PEMFC의 내부, 특히 MEA 가시화는 기존의 방법으로는 불가능하며, 중성자 영상법으로만 가능하다. Satija et al. [3]의 연구 후, 중성자원을 보유하고 있는 연구 기관에서 중성자 영상법을 연료전지, 특히 PEMFC 연구에 적용하기 위한 방법 및 결과를 최근까지 제시하고 있다[4-8].

중성자 영상법을 이용한 대부분의 연구는 PEMFC 성능에 집중되어 있다. 그렇지만, 자동차

† 포항공과대학교 기계공학과

E-mail: mhkim@postech.ac.kr

TEL: (054)279-2165 FAX: (054)279-3199

* 포항공과대학교 기계공학과

** 한국원자력연구소

에 주로 사용되는 PEMFC의 경우, 빙점 이하에서도 사용하기 때문에 운전 후에 PEMFC 내부에 존재하는 물의 상변화는 MEA 등에 손상을 줄 수 있다. 그러므로 운전 후에 존재하는 물은, 위치에 관계없이 가능한 빨리 제거되어야 한다. 그렇지만 현재까지 물 배출 특성에 관한 연구 및 어떠한 기준도 마련되어 있지 않다. 그러므로, 본 연구에서는 한국원자력연구소의 중성자 영상 장치(Neutron Radiography Facility, NRF)와 모사 실험 장치를 이용하여 PEMFC 내에 존재하는 물 배출 특성을 실험적으로 연구하였다. 그리고, 물 배출 특성 연구에 앞서 NRF에서의 중성자 선형 흡수 계수를 보정하고, 중성자 속에 따라 발생하는 측정 오차를 보정하여 PEMFC 내에 존재하는 물 분율의 정밀한 측정을 위한 기초를 마련하였다. 이를 바탕으로 PEMFC 내부에 존재하는 물이 압축 공기 유량에 나타나는 현상을 중성자 영상법과 모사 실험 장치를 이용하여 가시화하고, 이를 정량화하였다.

2. 실험 장치 및 실험 조건

2.1 모사 실험 장치

중성자 영상법을 이용하여 연료전지로 공급되는 압축 공기 유량에 따른 연료전지 내부 물의 배출 현상을 가시화하기 위해 물과 압축 공기로 구성된 모사 실험 장치를 구성하였다. 운전 중인 PEMFC에서 생성되는 물의 대부분은 공기극(Cathode)에 존재하기 때문에, 실제 운전 상황을 모사하기 위해 압축 공기를 이용하여 물을 PEMFC 공기극(Cathode)으로만 공급하였다. 압축 공기를 이용하여 공기극 입구에 물을 공급한 후, 공기극 출구에 위치한 밸브를 닫아, 물이 공기극 내부에 존재하도록 하였다. 연료전지 운전 중에 발생하는 물의 온도가 60°C에서 80°C이기 때문에, 핫플레이트를 사용하여 물의 온도를 일정하게 유지하고, PEMFC 내부로 공급되는 물의 온도를 운전상황과 동일하게 유지하였다. Fig.1은 물과 공기로 구성된 모사 실험 장치의 개략도이다.

반응 면적 100 cm²인 1-parallel serpentine의 단위 전지를 본 연구에 사용하였다. 채널의 폭과 깊이는 각각 1 mm이며, 채널과 릿(Rib)의 비는 0.5로 구성되어 있다. 실험의 간편성을 위해 연료극(Anode)과 공기극의 유로 방향을 대칭으로 설계, 제작하였다. Fig. 2는 실험에 사용된 PEMFC의 유로 단면도이다.

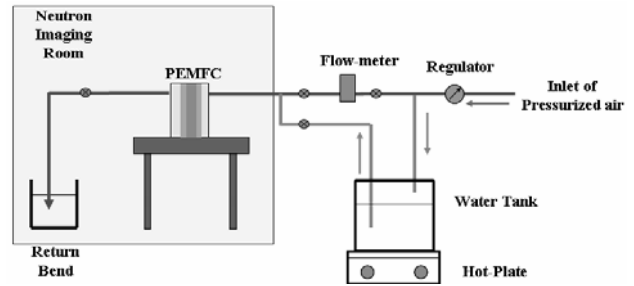


Fig. 1 Schematic diagram of feasibility test apparatus

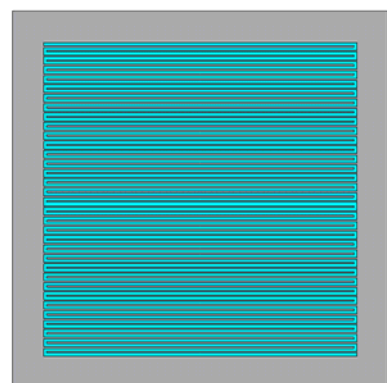


Fig. 2 Schematic diagrams of the investigated flow field geometry (1-parallel serpentine)

2.2 선형 흡수 계수 보정 장치

한국원자력연구소 내의 중성자 영상 장치(Neutron Radiography Facility, NRF)에서의 열중성자 선형 흡수 계수(Linear Attenuation Coefficient)를 보정하기 위해 알루미늄 블록과 물로 구성된 보정 장치를 Fig. 3과 같이 제작하였다. 알루미늄 블록을 이용하여 물 두께를 최소 50 μm에서 최대 500 μm, 50 μm 간격으로 10 단계로 구성하였으며, 물 계단에 효과적으로 물이 공급되게 하기 위해 물 계단 양쪽에 물 기둥을 설치하였다.

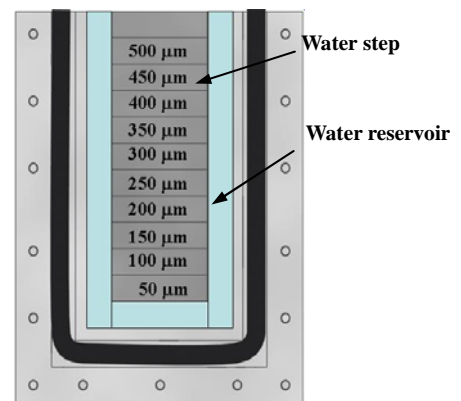


Fig. 3 Schematic Diagram of Al Block

2.3 중성자 영상 장치

중성자 영상법은 중성자원, 전환막과 CCD 카메라로 구성된 검출 장치로 구성된다. 본 연구에서는 중성자원으로 한국원자력 연구소의 연구용 원자로 내의 중성자 영상 장치(NRF)를 이용하였다. NRF는 실험 종류에 따라 중성자속(Neutron Flux)과 빔 집속비(L/D ratio)를 다르게 선택할 수 있다. 중성자 영상법에서 중성자속은 시간 분해능과 연관성이 있고, 빔 집속비는 공간 분해능과 연관성이 있다. 그러나 중성자 속과 빔 집속비를 동시에 향상시킬 수는 없기 때문에 몇 초안에 일어나는 연료전지 내의 현상을 가시화하기 위해서는 중성자속과 빔 집속비의 최적화가 필요하다. 그래서 본 연구에서는 시간 및 공간 분해능을 고려하여 약 10^6 n/cm²sec와 200의 중성자 속과 빔 집속비를 선택하였다. 그리고 검출 장치는 ⁶LiF/ZnS:A의 중성자 전환막과 VersArray 1340×1300 픽셀의 Cooled CCD 카메라를 사용하였다. 이에 따라 본 연구의 공간 및 시간 분해능은 약 150 μm와 3 초이다.

2.4 Image Processing Method

중성자 영상법으로 측정된 이미지는 중성자 진행방향에 존재하는 PEMFC에 대한 모든 정보를 포함하고 있다. 즉, 운전 중인 PEMFC를 중성자 영상법으로 측정된 이미지에는 PEMFC를 구성하는 물질의 정보와 PEMFC 내부에 존재하는 물의 정보가 동시에 존재한다. 그러므로 하나의 측정 이미지를 바탕으로 PEMFC 내부의 물 거동 및 분포를 추출하기는 쉽지 않다. 그러므로 본 연구에서는 *Dry*와 *Wet*의 이미지를 이용하여 물 분포, 거동 및 정량화에 대한 정보를 추출하였다. 여기서 *Dry* 이미지는 운전하지 않은 연료전지를 중성자 영상법으로 측정된 이미지를, *Wet* 이미지는 운전 중인 연료전지를 측정된 이미지를 의미한다. 연료전지의 운전 여부에 상관없이 중성자 영상법으로 측정된 이미지에는 연료전지 자체 이미지 및 연료전지에 의해 발생한 노이즈를 포함하고 있다. 그러므로 *Wet* 이미지에서 *Dry* 이미지를 나누게 되면 *Wet* 이미지에 존재하는 연료전지 자체 이미지 및 노이즈가 제거되어 물의 분포 및 거동에 대한 정보를 추출할 수 있다. 그리고, PEMFC 유로에 존재하는 물의 두께 또는 부피를 *Dry*와 *Wet* 이미지를 이용하여 이상적으로 계산할 수 있다. PEMFC 운전 여부에 따라 검출 장치에 도달하는 중성자속은 아래와 같이 계산할 수 있다.

$$\Phi_{Dry} = \Phi_o e^{-\Sigma_{ch} t_{ch}} \quad (1)$$

$$\Phi_{wet} = \Phi_o e^{-(\Sigma_{ch} t_{ch} + \Sigma_{water} t_{water})} \quad (2)$$

식(1)과 (2)에서 연료전지 전단의 중성자 속(Φ_o)은 변하지 않는다고 가정하고, 연료전지를 구성하는 물질과 물의 중성자 흡수 계수들(Σ)은 일정하기 때문에 식(3)과 같이 각 픽셀당 연료전지 채널

에 존재하는 물의 두께를 구할 수 있다. 이렇게 측정된 두께와 공간 분해능을 이용하면 픽셀당 물 부피를 계산할 수 있다.

$$t_{water} = -\frac{1}{\Sigma_{water}} \ln\left(\frac{\Phi_{Dry}}{\Phi_{wet}}\right) \quad (3)$$

본 연구에서는 PEMFC 내에 존재하는 물 부피를 측정하기 위해 물의 열중성자 선형 흡수 계수 값을 보정 실험에서 구한 값을 이용하였다.

3. 실험 결과 및 토론

중성자 영상법을 PEMFC에 적용하기 전에, NRF의 중성자속이 시간에 대한 변화를 약 2시간 동안 노출 시간 3 초로 측정하였다(Fig. 4 참조). NRF의 중성자속은 시간에 따라 약 3%의 변화를 보이는 것을 알 수 있다.

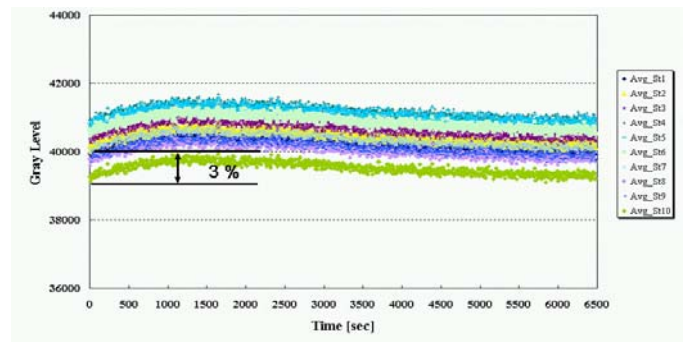


Fig. 4 Neutron flux variation with time at NRF

중성자속이 일정하면 AI 블록으로 만든 보정 장치의 물 두께는 노출 시간에 관계없이 일정한 값을 가져야 한다. 그렇지만 중성자속 변동 효과를 고려하지 않을 경우, 노출 시간에 따라 다른 값을 가지는 것을 알 수 있다(Fig. 5 참조). 그러므로 PEMFC 내에 존재하는 물의 두께 혹은 부피를 정밀하게 측정하기 위해서는 중성자속 변동 효과를 반드시 고려해야 한다. 본 연구에서는 중성자 이미지에서 시편(AI 블록 또는 PEMFC)이 존재하지 않는 곳의 중성자속을 이용하여 시간에 따른 중성자속을 보정하였다. Fig. 6은 노출 시간 1 및 2 초에서 측정된 결과를 알루미늄 블록 외부의 기준점을 이용하여 보정한 결과로, 노출 시간에 관계없이 일정한 값을 갖는 것을 알 수 있다.

PEMFC 내에 존재하는 물의 두께 또는 부피를 계산하기 위해서는 물의 중성자 선형 흡수 계수를 알아야 한다(2.4 절 참조). 중성자 선형 흡수 계수는 중성자 스펙트럼에 따라 차이가 존재한다. 문헌을 통해 구할 수 있는 중성자 선형 흡수 계

수는 여러 에너지를 가지는 중성자의 평균값이며, 문헌값[9]은 중성자원에 따라 그 값이 조금씩 차이가 난다. 본 연구에서는 PEMFC 내에 존재하는 물 두께/부피의 정밀한 측정을 위해 AI 블록으로 만든 보정 장치를 이용하여 하나로 NRF 에서 중성자 선형 계수를 측정하였다. Fig. 7 은 중성자 이미지 내의 평균 음영값과 중성자 영상법으로 계산한 물 두께의 관계이다. 물 두께와 평균 음영값의 기울기, 0.3029 mm^{-1} 가 NRF 에서의 중성자 선형 흡수 계수이다. 이 계수를 이용하여 본 연구에서 PEMFC 내에 존재하는 물 두께 또는 부피를 계산하였다.

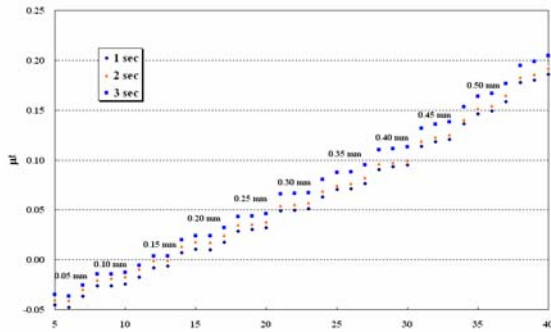


Fig. 5 Test result without neutron flux correction

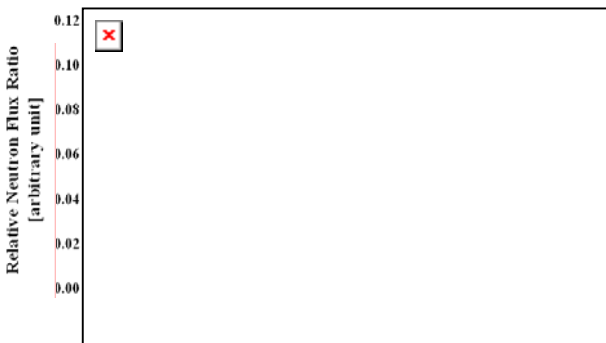


Fig. 6 Test result with neutron flux correction at 1 and 2 sec

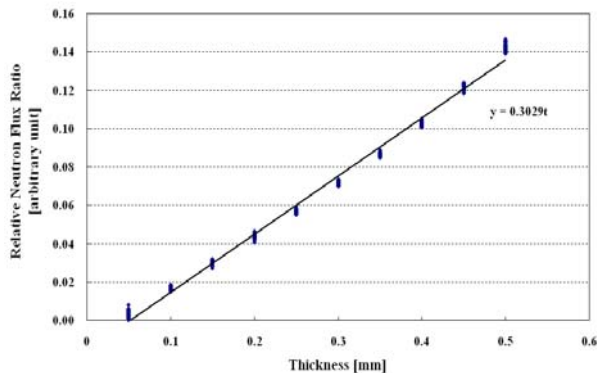
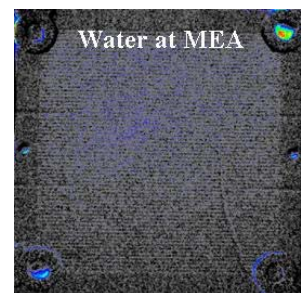
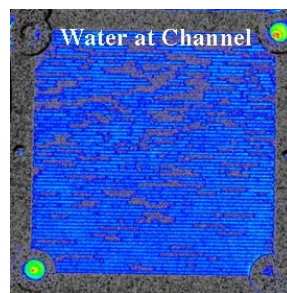
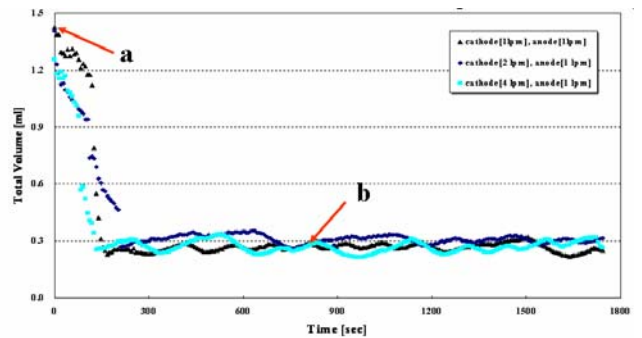


Fig. 7 Calibration of linear attenuation coefficient for water

PEMFC 내에 존재하는 물을 압축공기를 이용한

방법과 압축공기와 히터를 동시에 이용한 방법에 따라 나타나는 배출 특성 실험을 수행하였다. 이미지 프로세싱을 적용하지 이미지에 존재하는 물을 관찰하기는 쉽지 않기 때문에, 관찰의 용이를 위해 모든 측정 결과에 흑백 음영값을 이용하여 색깔을 변화시켰다. 색변환은 PEMFC 내의 물 분포 및 거동 분석을 쉽게 하기 위한 작업이며, 정략적인 분석에는 아무런 영향을 미치지 않는다. 측정 결과에서 흰색은 물이 적은 곳을 의미하며, 파란색은 많은 것을 의미한다.

Fig. 8 에서 *a* 는 PEMFC 내부로 압축공기를 공급하기 전 상태를, *b* 는 압축 공기 공급 800 초 후의 상태를 의미한다. 압축 공기 공급 후 PEMFC 내에 존재하는 물 부피가 급속히 감소하는 것을 알 수 있으며, 약 150 초 후부터 일정한 값을 유지하는 것을 알 수 있다. 이것은 압축 공기에 의해 순간적으로 PEMFC 유로에 존재하던 물이 제거되었으나, MEA 에 존재하는 물은 시간에 관계없이 일정한 값을 갖는 것을 의미한다. 위 결과는 Fig. 8-a) 와 8-b)를 통해 확인할 수 있다. 압축 공기를 공급하기 전(Fig. 8-a 참조)에는 유로에 물이 존재하는 것을 알 수 있으나, 압축 공기 공급 800 초 후(Fig. 8-b)에는 흐리게 MEA 에만 물이 존재하는 것을 알 수 있다. 압축 공기 유량이 증가함에 따라(1 → 4 lpm) 유로에 존재하는 물 배출 효율은 증가하나, MEA 에 존재하는 물은 제거되지 않는 것을 알 수 있다.



a)

b)

Fig. 8 Result of the compressed air supply method only: a) starting position and b) after 800 sec

4. 결론

본 연구에서는 중성자 영상법과 모사실험 장치를 이용하여 PEMFC 내에 분포하는 물의 배출 특성 실험을 수행하였다. 물 배출 특성 실험에 앞서, 정밀한 물 두께 측정을 위해 AI 블록 보정 장치를 이용하여 NRF 에서의 중성자 선형 흡수 계수를 측정하였다. 그리고 중성자속 변동에 의한 효과를 고려하여 그에 따른 오차를 제거하였다. 이를 바탕으로 PEMFC 내에 존재하는 물 부피를 정밀하게 측정하였다. PEMFC 유로에 존재하는 물은 압축 공기를 공급 후 150 초 이내에 제거되지만, MEA 에 존재하는 물은 제거되지 않았다. 본 연구를 통해 연료전지 내의 물 분포/거동과 정량화에 필요한 기법을 확립하였으며, 이는 추후 연료전지 성능 향상에 크게 기여할 것으로 예상된다. 하지만 시간 분해능이 3 초로 연료전지 내의 비정상 현상에 비해 상대적으로 길어 연료전지 내의 순간적인 현상을 측정하기에는 아직까지는 무리가 있다. 그렇지만 최근 들어 고성능 전환막 등 중성자 영상법의 핵심 분야에서 많은 발전이 있기 때문에 머지않아 시간 분해능이 크게 향상될 것으로 기대된다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 Global Partnership Program 및 현대자동차 후원으로 수행되었습니다.

참고문헌

- (1) C. K. Dyer, 2002, "Fuel cells for portable applications", *J. Power Sources*, 106, 31-34
- (2) W. Vielstich, A. Lamm, H. Gasteiger, 2003, "Handbook of fuel Cells-Fundamentals, Technology, Application", Wiley, New York
- (3) R. Satija, D.L. Jacobson, M. Arif, S.A. Werner, 2004, "In-situ neutron imaging technique for evaluation of water management systems in operating PEM fuel cells", *J. Power Sources* 129, 238-245.
- (4) N. Pekula, K. Heller, P.A. Chuang, A. Turhan, M.M. Mench, J.S. Brenzier, K. Unlu, 2005, "Study of water distribution and transport in a polymer electrolyte fuel cell using neutron imaging", *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 542,134-141.
- (5) M.M. Mench, Q.L. Dong, C.Y. Wang, 2003, "In-situ water distribution measurements in a polymer electrolyte fuel cell", *J. Power Sources* 124, 90-98.
- (6) Q. Dong, J. Kull, M.M. Mench, 2005, "Real-time water distribution in a polymer electrolyte fuel cell", *J. Power Sources* 139, 106-114.
- (7) D. Kramer, E. Lehmann, G. Frei, P. Vontobel, A. Wokaun, G.G. Scherer, 2005, "An on-line study of fuel cell behavior by thermal neutrons", *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 542, 52-60.
- (8) D.S. Hussey, D.L. Jacobson, M. Arif, P.R. Huffman, R.E. Williams, J.C. Cook, 2005, "New neutron imaging facility at the NIST", *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 542, 9-15.
- (9) J.C. Domannus, G. Bayon, L. Greim, A.A. Harms, H.P. Leeftang, J.F.W. Harkgraf, R. Matfield, and D.J. Taylor, 1992, "Practical Neutron Radiography", London, Kluwer Academic Publishers.