PEM 연료전지 스택의 동적 시뮬레이션에 관한 연구

김 태 훈, 최 우 진
숭실대학교 전기공학부

Research on the Dynamic Simulation of the PEM Fuel Cell Stack

Tae-Hoon Kim, Woojin Choi
Department of Electrical Engineering, Soongsil University

ABSTRACT

본 논문에서는 PEM(Proton Exchange Membrane) 연료전지 스택의 동적 특성에 관한 시뮬레이션에 대하여 기술한다. 연료전지의 출력은 부하 변동에 따른 가스 압력의 변화와 동작 온도의 변화 등에 민감하게 반응하는 특성을 갖고 있다. 본 논문에서는 부하 변화에 따른 스택 내부 채널의 가스 압력 변화를 계산하고 이를 Nernst 방정식에 적용하여 출력전압의 변동을 계산한 뒤 부하에 따른 손실을 계산하는 방법으로 동적 모델링을 수행하고 이를 이용한 시뮬레이션을 실시하였다. 스택의 각종 파리미터는 실험을 통해 추출되었고, 이를 적용한 Matlab/Simulink 시뮬레이션을 통해 제안된 모델이 연료전지 스택의 정특성 및 동특성을 적절하게 추종함을 확인하였다.

1. 서 론

최근 들어 다양한 분야에서 연료전지를 상용화하기 위한 기술들이 적극적으로 개발되고 있다. 연료전지의 발전 특성은 연료전지의 종류, 발전 용량 그리고 스택의 구성방식 따라 차이가 있으나 기본적으로 저전압, 대전류 특성과 부하에 따라 발전 전압이 크게 변동하는 특성을 갖는 직류전원이다. 따라서 연료전지를 상용 전원으로 이용하기 위해서는 연료전지의 발전 전력을 상용 전력으로 변환해 주는 전력변환 장치의 사용이 필수적이다. 이러한 전력변환장치를 설계할 경우 연료전지에 관한 정특성 및 동특성에 관한 정보는 고효율, 고성능의 시스템을 설계, 제작하는데 매우 중요한 요소가 된다. 연료전지의 정특성에 관한 정보는 상대적으로 측정이 용이하고 제조사도 측정 결과를 공개하므로 용이하게 입수될 수 있으나 동특성에 관한 정보는 일반적으로 제공되지 않으며, 연료전지의 내부 반응을 나타내는 방정식이 복잡하고 이에 필요한 많은 변수들을 구하기 어렵다는 점으로 인해 쉽게 알기 어렵다.

본 논문에서는 실험을 통해 이러한 연료전지 방정식에 요구되는 파라미터를 추출하고 이를 이용한 연료전지 스택의 동적 시뮬레이션을 수행하였다. 부하 변동에 따른 가스 압력 변화와 공급 유량과의 관계로부터 Nernst 전압을 계산하고, 활성화 전압 손실, 내부 전류 손실, 저항 전압 손실, 농도 전압 손실을 부하에 따라 계산하였다. 제안된 모델은 Matlab/Simulink를 이용하여 시뮬레이션 되었으며, 모델의 부하 추종성을 검증하기 위해 이를 BCS Fuel Cell사의 150W급 PEM 연료전지 스택의 실험 결과와 비교, 분석 하였다.

2. 연료전지 스택의 모델링

2.1 연료전지 스택의 구성

본 논문에서 모델링을 위해 사용한 연료전지는 150W급 PEM 연료전지 스택으로 24개의 단전지와 냉각을 위한 3개의 냉각셀로 이루어져 있으며, 전극의 면적은 50cm^{2}으로 BCS Fuel Cell사에서 제작되었다. 그림 1은 연료전지 스택의 구성을 나타내는데, 애노드(연료극)로 입력되는 99.99%의 고순도 수소는 고압실린더로부터 감압되어 공급되며 가습은 필요치 않다. 스택 내부의 애노드 유로에 불활성물과 불순물의 축적을 방지하고, 캐소드(공기극)로부터 역확산 되는 수증기를 배출하기 위해 캐소드의 후단에는 퍼지 밸브가 설치된다. 반응에 필요한 산소는 냉각용 공기와 함께 측면에 장착된 소형 냉각팬을 통하여 공급된다.

본 논문에서 제안하는 모델링은 다음과 같은 가정을 바탕으로 시행하였다.

- 기체들은 모두 이상적이다.
- 스택의 유로 내부에서는 일정한 압력을 가진다.
- 수소와 수증기는 오리피스를 통해 배출되고 산소는 캐소드의 채널을 통해 배출된다. 이때 배출되는 가스 채널의 내부와 외부사이는 오리피스가 초킹 될 수 있는 충분한 압력 비를 가진다.
- 동작 중 스택의 온도는 일정하다.
- 각 셀의 전압 및 전류 특성은 같다.

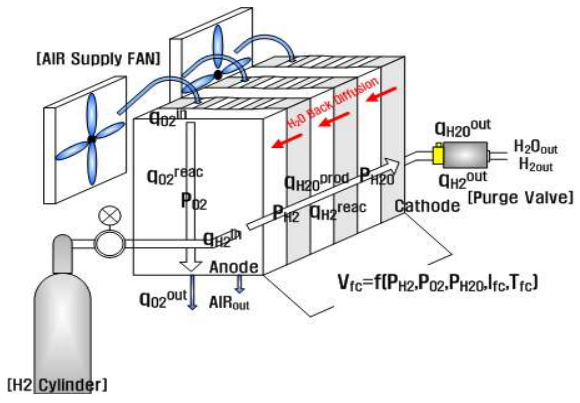

그림 1 PEM 연료전지 스택
Fig. 1 PEM Fuel Cell Stack

2.2 가스 밸브의 오리피스에서 압력과 유량의 관계

가스 밸브의 오리피스에서 기체의 유량은 일반적으로 전·후단의 압력변화에 따라 변화하지만, 밸브 전·후단의 압력차가 일정치를 초과하면 전단 압력의 변화에 따라서만 유량이 변화하게 되

는 초킹 현상이 일어난다. 초킹 상황에서 유체는 하단의 압력 변화와 무관하게 일정 유량으로 흐르게 되며, 상단의 압력과 질량 유량에는 다음과 같은 관계가 성립하게 된다.[1]

$$W = CAP_u\sqrt{\left(\frac{kM}{ZRT}\right)\left(\frac{2}{k+1}\right)^{(k+1)/(k-1)}} \quad (1)$$

W: 질량유량$[kg/s]$, C: 방전계수, A: 오리피스 면적$[m^2]$, k: 비열비

P_u: 전단압력$[atm]$, M: 몰질량$[kg/kmol]$, R: 기체상수$[(atm \cdot m^3)/(kmol \cdot K)]$

T: 절대온도$[K]$, Z: 가스 압축 계수

이때 일정한 온도와 비열비를 가지는 혼합기체에서 압력의 변화에 대한 유량의 변화를 나타내는 비례계수 K는 다음과 같이 표현할 수 있으며, 밸브 상수라 한다. 이때 K는 오직 오리피스 면적과 온도의 함수가 된다.

$$K = \frac{W}{P_u\sqrt{M}} = CA\sqrt{\left(\frac{k}{ZRT}\right)\left(\frac{2}{k+1}\right)^{(k+1)/(k-1)}} \quad (2)$$

K: 밸브상수$[\sqrt{kmol \cdot kg}/(atm \cdot s)]$

PEM 연료전지에서 애노드의 경우 배출되는 혼합기체는 연료 이용률을 이용하여 몰질량으로 표현 할 수 있으므로 식 (2)는 다음과 같은 식으로 정의 된다.

$$W_{an} = P_{an}K_{an}\sqrt{(1-U_f)M_{H_2} + U_f M_{H_2O}} \quad (3)$$

W_{an}: 연료극 질량유량$[kg/s]$, K_{an}: 연료극 밸브상수$[\sqrt{kmol \cdot kg}/(atm \cdot s)]$

M_{H2}: 수소 몰질량$[kg/kmol]$, M_{H2O}: 수증기 몰질량$[kg/kmol]$

P_{an}: 연료극 내부 압력$[atm]$, U_f: 연료이용률

초킹된 오리피스를 통과해서 배출되는 혼합 기체에서 각 유체의 몰 유량은 채널 내부의 분압이 비례관계에 있다고 가정한다면 밸브상수를 이용하여 다음과 같이 표현 할 수 있다.[2]

$$q_{H_2}^{out} = \frac{P_{H_2}K_{an}}{\sqrt{M_{H_2}}} \quad (4)$$

$$q_{H_2O}^{out} = \frac{P_{H_2O}K_{an}}{\sqrt{M_{H_2O}}} \quad (5)$$

$q_{H2}^{out}, q_{H2O}^{out}$: 수소와 수증기의 몰 유량$[kmol/s]$, P_{H2}, P_{H2O}: 수소와 수증기의 분압$[atm]$

식 (4)와 (5)를 이용하여 식(3)에 대입하면 애노드에서 배출되는 가스의 질량 유량은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$W_{an} = P_{an}K_{an}\left[(1-U_f)\sqrt{M_{H_2}} + U_f\sqrt{M_{H_2O}}\right] \quad (6)$$

식(3)과 식(6)을 비교해보면 가스의 이용률이 1인 경우 두 식은 동치가 되며, 연료전지의 애노드에서 수소 이용률은 보통 0.9 이상이므로 식 (6)을 이용해도 큰 오차가 없음을 알 수 있다. 그러나 같은 식을 캐소드에 적용할 경우 산소 이용률은 수소 이용률 보다 낮으므로 약간의 오차가 발생할 수 있으며, 이 경우 보정 계수를 이용하여 이러한 문제를 피할 수 있다.

2.3 연료전지 스택의 모델링

각각의 유체를 분리하여 이상 기체 방정식을 적용 시켰을 때 애노드 채널 에서 수소에 관한 기체방정식은 다음과 같다.

$$P_{H_2}V_{an} = n_{H_2}RT \quad (7)$$

V_{an}: 연료극의 부피$[l]$, n_{H2}: 수소의 몰 수

가스의 압력항에 대해 정리하고, 이를 시간에 대해 미분하면 다음과 같은 식을 얻을 수 있다.

$$\frac{d}{dt}P_{H_2} = \frac{RT}{V_{an}}q_{H_2} \quad (8)$$

이때 애노드 채널 내 수소의 몰 유량은 입력 유량과 반응 유량 및 배출 유량의 합과의 차로 다음처럼 표현 할 수 있다.

$$\frac{d}{dt}P_{H_2} = \frac{RT}{V_{an}}(q_{H_2}^{in} - q_{H_2}^{out} - q_{H_2}^{reac}) \quad (9)$$

$q_{H_2}^{in}$: 입력 몰 유량, $q_{H_2}^{out}$: 배출 몰 유량, $q_{H_2}^{reac}$: 반응 몰 유량

여기서 반응한 수소의 유량은 연료전지의 출력 전류를 이용하여 계산할 수 있으며 입력되는 수소의 유량은 반응한 수소의 유량과 수소의 화학량론의 곱으로 계산할 수 있다.

$$q_{H_2}^{reac} = \frac{N_0 I}{2F} \quad (10)$$

$$q_{H_2}^{in} = q_{H_2}^{reac}\lambda_{H_2} \quad (11)$$

N_0: 스택의 셀 개수, F: 패러데이 상수$[C/kmol]$, I: 스택의 전류, λ_{H2}: 수소의 화학량론

이제 식 (9)는 식(4), (10), (11)을 이용하여 다음과 같이 다시 표현 할 수 있다.

$$\frac{d}{dt}P_{H_2} = \frac{RT}{V_{an}}\left(\frac{N_0\lambda_{H_2}}{2F} - \frac{K_{an}P_{H_2}}{\sqrt{M_{H_2}}} - \frac{N_0 I}{2F}\right) \quad (12)$$

위의 식을 수소의 분압 항끼리 정리하고 라플라스 변환을 취하면 다음과 같이 표현된다.

$$P_{H_2} = \frac{\sqrt{M_{H_2}}/K_{an}}{\tau_{H_2}s+1}\left(\frac{N_0\lambda_{H_2}}{2F} - \frac{N_0}{2F}\right)I \quad (13)$$

여기서, $\tau_{H_2} = V_{an}\sqrt{M_{H_2}}/K_{an}RT$

산소 및 수증기에 대해서도 동일한 방법으로 각 기체의 압력에 관한 미분방정식을 세울 수 있다.

연료전지 스택의 전압은 개방 전압과 4개의 비가역적인 손실 전압으로 나타나는데, 이들은 활성화 손실 전압, 내부전류 손실 전압, 저항 손실 전압 및 농도 손실 전압이다.[4],[5]

$$V_{stack} = E - (\Delta V_{act} + \Delta V_{ohm} + \Delta V_{trans}) \quad (14)$$

연료전지 스택의 개방 단자 전압은 평형전압과 각 가스의 내부 분압 변화에 따른 전압 변동분의 합으로 표현되는 Nernst 방정식으로 계산된다.

$$E = N_0\left[E_0 + \frac{RT}{2F}ln\left(\frac{P_{H_2}P_{O_2}^{0.5}}{P_{H_2O}}\right)\right] \quad (15)$$

E_0: 온도와 상태에 따른 깁스 생성 자유에너지의 전압, $(-\Delta\overline{g_f}/2F)$ [V]

활성화 손실 전압은 식 (16)과 같이 교환전류밀도, 내부전류 밀도 및 출력전류 밀도를 이용하여 Tafel 식으로부터 계산된다. 이러한 파라미터들은 실측을 통해 얻은 데이터로부터 활성화 전압 손실이 우세한 영역의 데이터를 추출하여 최적 근사선의 방정식으로 커브피팅 하여 구한다.

$$\Delta V_{act} = \frac{RT}{2\alpha F}ln\left(\frac{i+i_n}{i_0}\right) \quad (16)$$

α: 전하이동계수, i_0: 교환전류밀도$[mA/cm^2]$, i_n: 내부전류밀도$[mA/cm^2]$

저온 PEM 연료전지의 경우 내부전류는 개회로 전압에 대해 상당히 큰 영향을 미치기 때문에 무시할 수 없는 요인이 된다. 내부전류 밀도는 무부하시 연료전지 스택의 수소 연료의 유량을 측정함으로써 식(17)과 같이 계산할 수 있다.

$$i_n = \text{무부하시 수소의 유량} \times 2F \quad (17)$$

저항 손실 전압은 전해질에서의 이온 흐름에 대한 저항 성분 및 연료전지 스택 구성품의 고유한 저항성분에 의해 생기는 전압 손실이다. 이러한 손실은 기본적으로 전류에 비례하므로 옴의 법칙으로 식(18)과 같이 나타낼 수 있다.

$$\Delta V_{ohm} = iR^{int} \quad (18)$$

R^{int}: 스택의 내부 저항$[\Omega cm^2]$

농도 손실 전압은 특히 산소대신 공기를 사용하는 연료전지시스템에서 크게 나타나는데, 산소가 소비된 뒤에 남겨진 질소가 산소의 공급을 방해하여 출력 전류가 커질 경우 손실 전압을 급

격히 증가시키는 특징을 나타낸다. 이를 모델링 한 이론식도 존재하지만, 식(19)와 같은 실험식이 손실의 비선형적인 특성을 더 잘 반영하는 것으로 알려져 있다. 따라서, 여기서는 식 (19)와 같은 실험식과 전체 손실에서 활성화 손실과 저항 손실을 제외한 손실 부분을 이용하여 커브피팅 하는 방법으로 파라미터를 도출하고 모델링에 이용하였다.

$$\Delta V_{trans} = mexp(in) \qquad (19)$$

그림 2는 본 논문에서 제안한 연료전지 동적 모델을 검증하기 위하여 Matlab/Simulink를 이용한 시뮬레이션 블록도 이다.

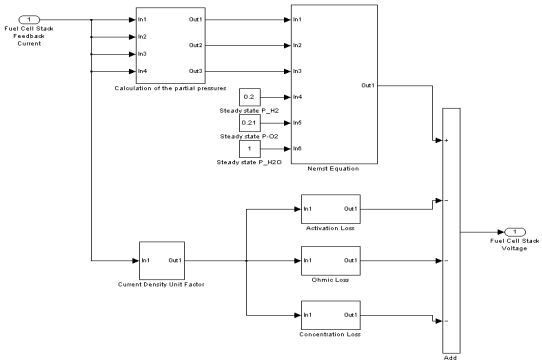

그림 2 PEM 연료전지 스택의 Matlab/Simulink 모델
Fig. 2 Matlab/Simulink model of the PEM fuel cell stack

2.4 시뮬레이션 결과 및 고찰

제안된 150W PEM 연료전지 스택 모델의 유용성을 검증하기 위하여 정상상태 및 과도상태의 시뮬레이션 결과와 실험결과를 비교하였다.

먼저 정상 상태에서의 시뮬레이션 결과와 실험 결과를 비교해 보았다. 각 운전점에서 연료전지가 정상 상태에 도달한 후 전압을 측정하여 연료전지 스택의 분극 특성 곡선을 얻었다. 그리고 모델링한 150W급 연료전지의 Matlab/Simulink 시뮬레이션을 사용하여 같은 방식으로 분극 특성 곡선을 그리고 그 결과를 비교하여 보았다. 그림 3에서 보듯이 실험결과와 시뮬레이션 결과는 매우 잘 일치하는 것을 볼 수 있다. 과도 상태의 동특성을 비교하기 위해 스택에 그림 4와 같이 스텝으로 변화하는 부하 전류를 운전 중인 연료전지 스택에 전자부하를 이

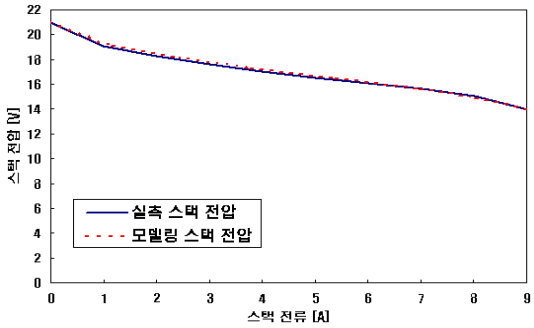

그림 3 PEM 연료전지의 분극 곡선
Fig. 3 Polarization curve of the fuel cell stack

용하여 인가한 후 출력 전압의 변화를 기록하였고, 동일한 방식으로 시뮬레이션을 실시하여 응답 전압을 기록한 후 그 결과를 비교하여 보았다. 그림 4에 보듯이 0~80초까지는 시뮬레이션 결과와 실험결과가 비교적 잘 맞는 것을 볼 수 있으나 80초 이후에는 차이가 나기 시작하는 것을 볼 수 있는데 이는 스택의 비선형성에 따른 것으로 판단된다. 시뮬레이션과 달리 실험에서는 운전이 지속됨에 따라 스택의 온도가 5°C 이상 상승하여 실험결과가 고정 파라미터를 가진 제안된 모델의 시뮬레이션 결과와 잘 맞지 않게 된 것으로 판단된다. 즉, 정격 출력을 낸 80초 이후 시점에서 연료전지 스택은 그 이전보다 온도가 상승함에 따라 활성화 되어 가역 개회로 전압이 상승하고 손실은 약간 낮아지는 온도 특성이 반영되어 시뮬레이션과 오차가 생기는 것으로 판단된다.

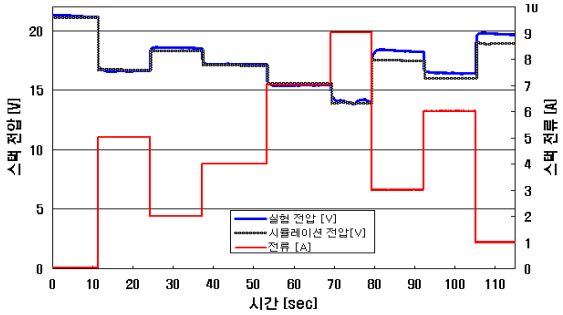

그림 4 PEM 연료전지 스택의 동특성 시험
Fig. 4 Dynamic test of the PEM fuel cell stack

3. 결 론

PEM 연료전지 스택의 동 특성 모델을 제안하고, 제안된 모델을 이용한 시뮬레이션 결과와 150W급 PEM 연료전지 스택의 실험 결과를 비교하였다. 연료전지의 부하 변동에 의한 채널 내의 가스 분압 변화에 따른 전압 변동분을 반영하고, 부하에 따른 연료전지 스택의 정상상태 손실을 표현함으로써 정상상태 및 과도상태의 특성을 모두 추종할 수 있는 모델을 개발 하였다. 제안된 모델을 이용한 시뮬레이션 결과는 특정 온도에서 실험 결과와 일치하며 온도가 변해감에 따라 오차가 생김을 알 수 있었다. 온도에 따른 파라미터의 변화를 반영한다면 더 정밀한 모델을 확립할 수 있을 것으로 기대된다.

참 고 문 헌

[1] J. Padulles, G.W. Ault, "An integrated SOFC plant dynamic model for power systems simulation", Journal of Power Sources 86, pp. 495-500, 2000, October.

[2] M.Y.El-Sharkh, A. Rahman, M.S. Alam et al., "A dynamic model for a stand-alone PEM fuel cell power plant for residential applictions", Journal of Power Sources 138, pp. 199-204, 2004, August.

[3] P.R. Pathapati, X. Xue, J. Tang, "A new dynamic model for predicting transient phenomena in a PEM fuel cell system", Renewable Energy 30, pp. 1-22, 2004, May.

[4] James Larminie, Andrew Dicks, Fuel Cell Systems Explained: Second Edition, Wiley. pp. 35-87, 2003.

[5] Frano Barbir, PEM Fuel Cells -Theory and Practice, Academic Pr. pp. 35-74, 2005.