

## 고분자연료전지의 냉각수 운전 조건에 관한 실험적 연구

정성일, 김태완, 이창건, 김두현, 안영철\*, 이재근, 황유진†

부산대학교 기계공학부, \*부산대학교 건축학부

### An Experimental Study of Coolant Operating Conditions in a Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell

Seongir Choeng, Taewan Kim, Changgun Lee, Doohyun Kim, Youngchull Ahn\*, Jaekeun Lee, Yujin Hwang†

Department of Mechanical Engineering, Pusan National University, Busan 609-735, Korea

†School of Architecture, Pusan National University, Busan 609-735, Korea

(Received May 2, 2008; revision received July 9, 2008)

**ABSTRACT:** A coolant operating condition in a fuel cell stack was an important factor to determine the temperature distribution which affected the fuel cell performance and relative humidity. In this study, the fuel cell performance was evaluated as a function of the coolant flow rate with the range of 0.1~0.8 liter/min·cell and the coolant inlet temperature of 20~82 °C. The cell temperature increased with increasing the coolant inlet temperature and with decreasing the coolant flow rate. The coolant inlet temperature and flow rate to maintain the better performance of the fuel cell were in the range of 45~60 °C and 0.2~0.4 liter/min·cell, respectively. The experimental results showed that the optimal heat removal rate from the stack by coolant was 0.4~0.6 W/cm<sup>2</sup>·cell.

**Key words:** Coolant(냉각수), PEMFC(고분자연료전지), Power(출력), Current density(전류 밀도), Flow rate(유량), Coolant inlet temperature(냉각수 입구측 온도)

#### 기 호 설 명

$A_{react}$	: 반응 면적 [cm <sup>2</sup> ]
$Cp_c$	: 냉각수의 비열 [kJ/kg·K]
$I$	: 전극 전류 [A]
$\dot{m}_c$	: 냉각수 유량 [liter/min]
$q''_c$	: 반응 면적당 열제거량 [W/cm <sup>2</sup> ]
$q''_{gen}$	: 반응 면적당 발열량 [W/cm <sup>2</sup> ]
$Q_{gen}$	: 연료전지의 총 발열량 [W]
$Q_{in}$	: 반응기체의 총 유입 에너지 [W]
$Q_{out}$	: 반응기체의 총 배출 에너지 [W]
$S_{H2}$	: 수소의 당량비
$S_{Air}$	: 공기의 당량비

$T_{c, in}$	: 냉각수 입구측 온도 [°C]
$T_{c, out}$	: 냉각수 출구측 온도 [°C]
$V_{cell}$	: Cell 전압 [V]
$W_{el}$	: 연료전지의 전력 발생량 [W]

#### 그리스 문자

$\eta$	: 연료전지 전압 효율 [%]
--------	------------------

#### 1. 서 론

현대에 들어 환경오염과 화석자원의 고갈에 따라 신·재생 에너지에 대한 관심이 증대되고 있다. 그에 따라 수소경제가 주목받고 있으며 수소

† Corresponding author

Tel.: +82-51-510-3441; fax: +82-51-582-6368

E-mail address: younggun@pusan.ac.kr

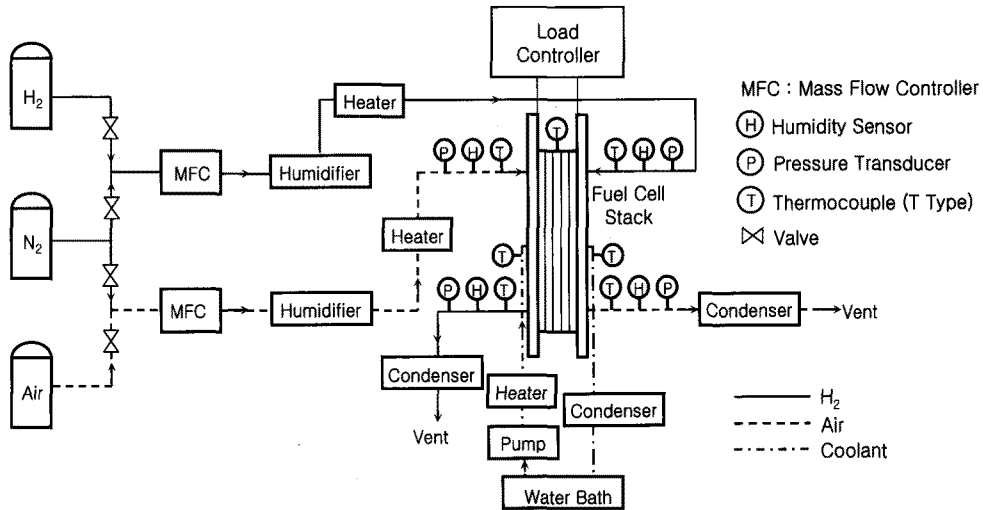


Fig. 1 Schematic diagram of test apparatus to evaluate a fuel cell performance.

경제를 이끄는 핵심요소는 연료전지이다.

특히, 고분자연료전지(polymer electrolyte membrane fuel cell, PEMFC)는 다른 연료전지에 비해 전류 밀도가 크고 구조가 간단하며 전해질 누설에 대한 우려가 없는 점 등으로 인해 최근 자동차용, 가정용 등으로 활발한 연구가 진행되고 있다.

고분자연료전지는 전기화학적 반응을 통해 전기를 생산하는 과정에서 열을 발생시키게 된다. 이러한 열은 연료전지를 운전 온도까지 상승시키는 역할도 하지만 과도한 온도 상승에 의해 내부 전해질을 건조하게 하여 전기전도도를 떨어뜨리고 더욱 과열될 경우 연료전지의 전해질을 손상시킨다.<sup>(1-2)</sup> 따라서 냉각을 통해 연료전지의 온도 및 수분관리가 필요하기에 많은 연구가 진행되고 있다. Dong et al.<sup>(3)</sup>은 단위 cell에서 부분 전류를 측정하여 cell 내부의 습도 분포를 간접적으로 예측하였으며, Büchi et al.<sup>(4)</sup>은 반응기체의 입구측 상대습도에 따라 반응기체의 부분 출력 전류값을 측정하였다. Hyun and Kim<sup>(5)</sup>은 무가습 상태에서 스택(stack)의 운전 온도 및 냉각 유체에 따른 출력특성을 분석한 연구를 수행하였다. Chen et al.<sup>(6)</sup>와 Kim et al.<sup>(7)</sup>은 냉각관 구조에 따른 스택의 온도, 반응기체의 농도 및 출력을 수치해석을 통해 분석하였다. 그러나 스택의 온도를 결정하는 냉각수의 적절한 운전 조건에 대한 연구는 미흡한 실정이며 이에 대한 연구가 필요하다.

따라서 본 연구에서는 냉각수의 유량 및 입구측 온도에 따른 스택의 출력을 평가하고, 또한 스택의 열 수지를 분석하여 냉각수 운전 특성과 냉각수에 의한 열제거량과의 상관관계를 도출하고 적절한 열제거 범위를 제시함으로써 향후 연료전지 냉각수 운전의 중요한 지침을 제공하고자 한다.

## 2. 실험장치 및 방법

### 2.1 실험장치

Fig. 1은 냉각수 유량 및 입구온도에 따른 연료전지 출력 및 열수지를 분석하기 위한 실험장치의 개략도이다. 연료전지의 운전을 위해서는 크게 H<sub>2</sub>, Air 공급부, 전력제어부, 냉각부가 필요하다. H<sub>2</sub>와 Air는 압축 탱크에서 mass flow meter(Bronkhorst, F-201)를 통해 유량을 제어하고 bubbler 타입의 가습기(CNL, Humidifier)로 유입되는 반응 기체에 가습을 실시하였다. 또한 유로를 이동하면서 수분의 응축을 막고 온도를 조절하기 위하여 line heater(MTOPE, LH-300)를 부착하였다. 출력을 제어하기 위하여 전력제어부로 load controller(EPL, ESL-5K)를 이용하여 constant current mode로 제어하였다. 냉각수의 운전을 위하여 pump(Iwaki, MDG)의 입력 전압을 제어하여 유량을 조절하였으며, 냉각수 온도 조절을 위해 line heater(MTOPE, LH-1000)와 자체

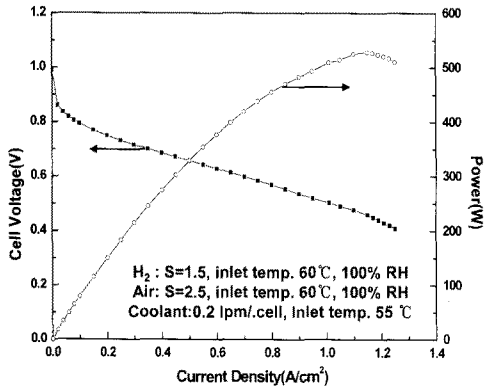


Fig. 2 A polarization curve of the fuel cell stack used in this study.

제작한 응축기를 부착하였다. 스택의 습도 및 열량 분석을 위하여 각 유체의 입·출구에 습도센서(E+E elektronik, EE99-1), 온도센서(Headong, T type thermocouple), 압력센서(Sen-sys, PTCO)를 부착하였다. 본 실험에 사용된 스택은 Gore 57 Series MEA(membrane electrolyte assembly)를 사용하여 5 cell로 제작하였으며 반응 면적은  $200 \text{ cm}^2$ 이다.

Fig. 2는 본 실험에 사용된 연료전지 스택의 polarization curve를 나타내고 있으며 이는 일반적인 연료전지 스택의 polarization curve<sup>(1)</sup>와 비교하였을 때 유사한 경향을 보이고 있으므로 연료전지 스택의 제작이 정상적으로 이루어졌음을 알 수 있다.

## 2.2 실험 방법

Table 1은 냉각수 유량 및 입구측 온도가 스택의 출력 및 열수지에 미치는 영향을 분석하기 위하여 기타 변수들을 고정하였는데 이때의 cell 운전 조건을 나타내고 있다. H<sub>2</sub>, Air의 운전 조건은 입구측 온도를 60 °C, 상대습도를 100%, 당량비를 각각 1.5, 2.5로 하였다. 전류는  $0.7 \text{ A/cm}^2$ 로 고정하여 constant current mode에서 출력 전압을 통해 스택의 성능을 분석하였다. 또한 연료전지의 열수지를 분석하기 위하여 H<sub>2</sub>, Air의 입·출구에서 습도, 온도 및 압력을 측정하였고, 냉각수의 유량 및 입·출구의 온도를 측정하였다.

본 실험에는 냉각수 입구측 온도는 20~82 °C 범위로, 냉각수 유량을 0.1~0.8 liter/min · cell로

Table 1 Operating conditions of H<sub>2</sub> and Air

	Stoichiometry	Inlet Temperature (°C)	Relative Humidity (%)
H <sub>2</sub>	1.5	60	100
Air	2.5	60	100
Constant Current	$0.7 \text{ A/cm}^2$		

변화시키면서 스택의 출력을 분석하였다. 각 측정 결과는 정상상태에 도달한 후 1초 간격으로 총 10분 간의 data를 획득하여 평균한 값이다.

## 3. 실험결과 및 고찰

### 3.1 냉각수 운전에 따른 출력 분석

Fig. 3은 냉각수 입구 온도 및 유량에 따른 연료전지의 출력 전압을 보여주고 있다. 냉각수 유량이 0.1 liter/min · cell인 경우 냉각수 유입 온도가 35~65 °C인 범위에서 정상적인 출력을 보이고 있다. 정상 영역을 벗어나 저온영역인 20 °C에서는 최대출력 대비 5.9%의 출력 저하를 보이고 있으며, 고온영역인 75 °C에서는 무려 17.6%의 출력 저하를 보이고 있다. 냉각수 유량이 0.8 liter/min · cell인 경우는 45~75 °C 범위에서 정상적인 출력을 보이고 있으며, 정상 범위를 벗어나는 저온영역인 37 °C에서 최대 출력 대비 8.1%의 성능 저하를, 고온영역인 82 °C에서는 20.4%의 성능저하를 보이고 있다. 냉각수 유량이 증가할수록 냉각수 입구측의 적정온도 범위는 높은 온도 범위로 이동하는 경향을 보이고 있다. 본 연구에서는 냉각수 입구 온도가 45~65 °C 범위에서, 냉각수 유량 0.2~0.4 liter/min · cell로 운전하였을 경우 적절한 운전 범위로 판단된다. 점선으로 표시된 ① 영역은 예측 결과로써 연료전지 스택의 손상이 우려되므로 더 이상의 실험을 수행하지 못하였다. 고온영역 및 저온영역에서 냉각수 운전의 제한은 연료전지 스택 내부의 온도 및 상대습도와 관계가 있다. 냉각수 유량 및 입구측 온도에 따라 스택 내부의 온도 및 습도 분포는 달라지며, 최종적으로 출력 전압의 차이로 나타나게 된다. 냉각수에 의해 스택이 충분히 냉각되지 못할 경우 스택 내부의 온도가 상승하고 상대습도가 낮

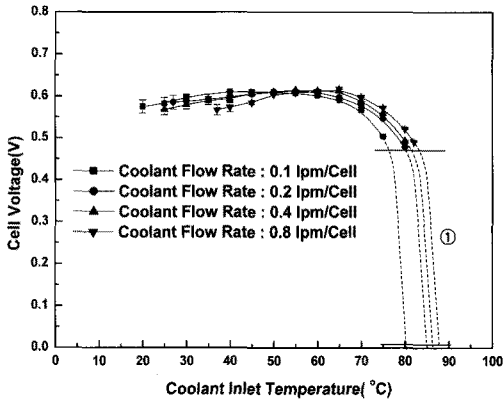


Fig. 3 Variations of the cell voltage with coolant flow rate and inlet temperature.

아지면서 MEA의 전기전도도가 감소하여 출력이 저하 된다. 반대로 너무 많은 열량을 제거할 경우 스택 내부의 온도가 감소하여 반응 온도가 낮아지고 액적이 형성되면서 water flooding 현상에 의해 반응 기체들의 확산 및 반응을 저해 하게 된다.<sup>(1-2)</sup>

이러한 현상을 막고 적절한 냉각수 운전을 위한 범위를 결정하기 위해서는 단순한 냉각수 운전 상태로만 나타낼 수는 없고 냉각수에 따른 스택의 열수지를 분석할 필요성이 있다.

### 3.2 냉각수 운전 에 따른 스택의 열수지 분석

본 연구에서는 냉각수 운전 특성에 따른 냉각수의 열제거량을 분석하였다. Fig. 4는 냉각수 운전 상태에 따른 cell의 온도를 나타내고 있다. cell 내부 전체의 온도를 측정하여 평균하여 cell 온도를 정의하기는 실질적으로 어려우므로 cell 온도의 정의로 주로 cell 표면 온도, 냉각수 출구 온도, cathode 출구 공기의 온도를 이용하여 정의하고 있다.<sup>(1)</sup> 본 연구에서는 냉각수 출구 온도가 가장 높은 경향을 나타내고 있다. 실제 스택 내부는 더 고온일 것으로 예상되므로 cell 온도를 냉각수 출구 온도로 정의 하였다. 냉각수 운전 에 따른 cell의 온도 변화는 냉각수 입구측 온도에 선형적으로 비례하고 냉각수 유량에는 반비례 한다. Fig. 5는 냉각수 운전 에 따른 냉각수 입·출구 간의 온도차를 나타내고 있다. 냉각수 입구측 온도가 낮을수록 냉각수 입·출구 간의 온도차는

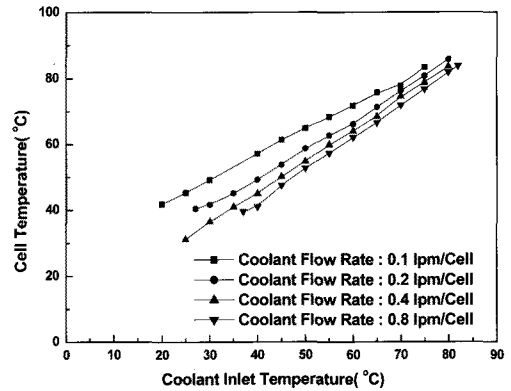


Fig. 4 Variations of the cell temperature with coolant flow rate and inlet temperature.

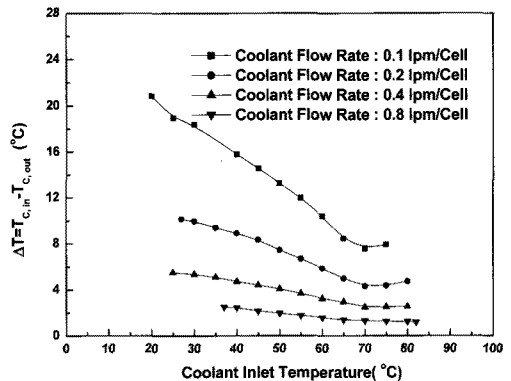


Fig. 5 Temperature difference between coolant inlet and outlet with coolant flow rate and inlet temperature.

크게 나타나며 또한 냉각수 유량이 적을수록 온도차가 크게 나타난다. 특히, 냉각수 유량이 증가함에 따라 냉각수 입구 온도에 따른 냉각수 입·출구 간의 온도차의 변화가 작게 나타나고 있다. 이는 냉각수가 연료전지에서 제거할 수 있는 최대 열량이 한정적이기 때문이다.

이러한 냉각수 운전 에 대한 정보와 출력 전력 에 대한 정보를 통해 연료전지의 에너지 수지를 분석하였다. 연료전지에서 에너지수지는 반응기체의 엔탈피가 전기와 열로 변환되고 잔류 엔탈피가 배출되게 되므로 식(1)과 같다. 연료전지에서 발생하는 열은 냉각수에 의해 제거되거나 스택의 외벽을 통해 주위로 소산되게 된다. 스택에서 발생하는 열량은 발생하는 전력에 따라 다르

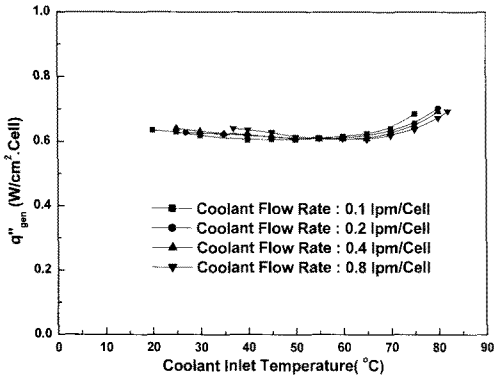


Fig. 6 Heat generation rate from the fuel cell stack with coolant flow rate and inlet temperature.

게 나타나며 반응 면적당으로 표현할 경우 식(2)와 같이 근사적으로 표현된다. 식(2)는 도입 연료가 스택 운전 온도에서 완전 포화되어 있을 경우에 해당한다.<sup>(1)</sup> Fig. 6은 식(2)에 의해 구해진 본 실험에서 실험조건별 연료전지의 발열량을 나타내고 있다. 냉각수에 의해 반응 면적당 스택으로부터 제거되는 열량은 식(3)과 같다.

$$\sum Q_{in} = W_{el} + Q_{gen} - \sum Q_{out} \quad (1)$$

$$q_{gen} = \frac{(1.482 - V_{cell})I}{A_{react}} \quad (2)$$

$$q_c = \frac{\dot{m}_c C_p (T_{c,out} - T_{c,in})}{A_{react}} \quad (3)$$

$$\eta = \frac{V_{cell}}{1.482} \quad (4)$$

Fig. 7은 냉각수의 유량 및 입구측 온도에 따른 냉각수의 열제거량을 나타내고 있다. 냉각수의 열제거량은 냉각수 입구 온도가 증가할수록 감소하는 경향을 보인다. 냉각수의 온도가 증가함에 따라 열전달 표면과의 온도차가 적어지면서 열제거량에 한계가 있음을 보여 주고 있다. 70 °C 이상에서는 스택의 발열량 증가로 오히려 냉각수에 의한 열제거량이 증가하게 된다.

냉각수에 의해 제거되지 못하는 열량은 스택의 표면 및 배출되는 수증기를 통해 제거되게 된다. 냉각수 온도가 증가함에 따라 스택의 온도와 외부 대기와의 온도차가 증가하게 되므로 자연대류 및 복사에 의한 열소산량이 증가하게 된다. 또한

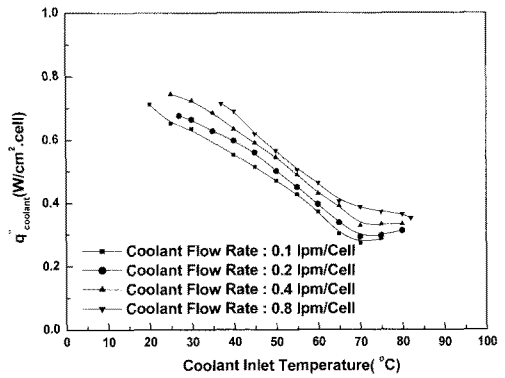


Fig. 7 Heat removal rate by coolant from the fuel cell stack with coolant flow rate and inlet temperature.

배출되는 기체의 포화수증기압이 증가하면서 보다 많은 양의 에너지가 수증기의 형태로 배출되게 된다. 냉각수의 유량에 따른 경향을 보면 냉각수 유량이 증가하면서 열제거량 또한 증가하고 있다. 이는 일반적인 현상으로 유속 증가에 따라 대류열전달 계수가 증가하면서 열전달량이 증가한 것이다.

식(4)는 연료전지의 고발열량을 기준으로 한 전압 효율을 나타내고 있다. 전압효율은 스택의 성능을 나타내는 기본 지표로써 열제거량에 따른 전압효율을 비교함으로써 적절한 열제거량을 결정할 수 있다. Fig. 8은 본 연구에서 열제거량에 따른 연료전지의 전압효율을 나타내고 있다. 열제거량이 0.4~0.6 W/cm<sup>2</sup>·cell 범위에서 안정적

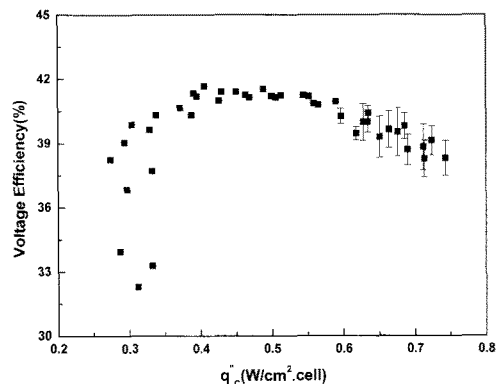


Fig. 8 Variation of voltage efficiency with heat removal rate by coolant from the fuel cell stack.

인 출력 특성을 보이고 있으며  $0.4 \text{ W/cm}^2 \cdot \text{cell}$  이하에서는 최대 7.6%의 효율 감소가 발생하며,  $0.6 \text{ W/cm}^2 \cdot \text{cell}$  이상에서 최대 3.2%의 효율 감소 및 2%의 큰 편차가 발생하고 있다. 이는 냉각수 운전에 의해 연료전지 내부의 온도 조건이 변함에 따라 상대습도가 변하기 때문이다.  $0.4 \text{ W/cm}^2 \cdot \text{cell}$  이하의 열제거량에서는 cell 온도의 증가로 인해 cell 내부의 상대습도가 낮아지면서 MEA의 전기전도도가 감소하여 출력이 감소하게 된다. 반대로  $0.6 \text{ W/cm}^2 \cdot \text{cell}$  이상의 열제거량에서는 과도한 냉각으로 인해 cell 내부에 수분의 응축이 발생하여 수소와 공기의 유동을 방해하는 water flooding 현상이 발생한 것으로 생각된다.

따라서 적절한 범위의 열제거량을 유지하여야 하며 본 연구의 결과  $0.4 \sim 0.6 \text{ W/cm}^2 \cdot \text{cell}$  범위로 열제거가 이루어 질 때 적절한 냉각수 운전 상태로 판단된다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 냉각수 운전에 대한 적절한 지침을 제공하고자 냉각수 입구측 온도 및 유량에 따른 출력 특성을 분석하고, 적절한 출력 특성을 유지하기 위한 냉각수의 열제거량 범위를 도출하였으며 주요 결과는 다음과 같다.

(1) 연료전지의 온도는 냉각수 운전 조건에 의해 결정되며, 냉각수 입구측 온도에 비례하고 유량과 반비례한다. 냉각수 유량에 따라 안정적인 성능을 나타내는 냉각수 입구측 온도 구간은 다르게 나타나며, 냉각수 입구측 온도가  $45 \sim 65 \text{ }^\circ\text{C}$  범위에서 냉각수 유량은  $0.2 \sim 0.4 \text{ liter/min} \cdot \text{cell}$ 로 운전하는 것이 적절한 성능을 유지하는 운전 범위로 판단된다.

(2) 냉각수에 의한 열제거량이  $0.4 \text{ W/cm}^2 \cdot \text{cell}$  이하일 경우 cell 내부 건조에 의해 전기전도도가 감소하여 출력이 저하되고,  $0.6 \text{ W/cm}^2 \cdot \text{cell}$  이상일 때는 cell 내부에 응축이 발생하여 반응기체의 확산을 방해하므로 열제거량을  $0.4 \sim 0.6 \text{ W/cm}^2 \cdot \text{cell}$ 의 범위로 조절하는 것이 바람직하다.

#### 후 기

본 연구는 교육인적자원부, 산업자원부, 노동부의 출연금으로 수행한 최우수실험실지원사업 및 부산대학교 기계공학부 발전기금의 지원을 받아 수행된 연구결과이며 이에 감사드립니다.

#### 참고문헌

1. Barbir, F., 2001, PEM fuel cells : theory and practice, Elsevier Academic Press, Burlington, pp. 115-206.
2. Larminie, J. and Dicks, A., 2003, Fuel cell systems explained, 2nd ed., John Wiley and Sons Inc., West Sussex, pp. 67-94.
3. Dong, Q., Mench, M. M., Cleghorn, S. and Beuscher, U., 2005, Distributed performance of polymer electrolyte fuel cells under low humidity conditions, Journal of the Electrochemical Society, Vol. 152, No. 11, pp. A2114-A2122.
4. Büchi, F. N., Geiger, A. B. and Neto, R. P., 2005, Dependence of current distribution on water management in PEFC of technical size, Journal of Power Sources, Vol. 145, pp. 62-67.
5. Hyun, D. and Kim, J., 2008, Study of external humidification method in proton exchange membrane fuel cell, Journal of Power Sources, Vol. 126, pp. 98-103.
6. Chen, F. C., Gao, Z., Loutfy, R. O. and Hecht, M., 2003, Analysis of optimal heat transfer in a PEM fuel cell cooling plate, fuel cells, Vol. 3, No. 4, pp. 181-188.
7. Kim, Y., Lee, Y., Lee, K., Kim, Y., Choi, J. and Ko, J., 2007, Numerical simulation on cooling plates in a fuel cell, Korean Journal of Air-Conditioning and Refrigeration Engineering, Vol. 19, No. 1, pp. 86-93.