

## Cathode 출구 압력 변화에 따른 PEM Fuel Cell 내에서의 플러딩에 관한 실험적 연구

안득균\*, 한성호\*, 김경록\*, 최영돈\*\*<sup>†</sup>

\*고려대학교 기계공학과 대학원, \*\*고려대학교 기계공학과

## Experimental Analysis for Variation of Pressure Difference on Flooding in PEM Fuel Cell at Cathode Channel Outlet

DEUKKEUN AHN\*, SEONGHO HAN\*, KYOUNGROCK KIM\*, YOUNGDON CHOI\*\*<sup>†</sup>

\*Grad. School of Korea Univ., Anam-dong, Seongbuk-gu, Seoul, 136-701, Korea

\*\*School of Mechanical Engineering, Korea Univ., Anam-dong, Seongbuk-gu, Seoul, 136-701, Korea

### ABSTRACT

The flooding, especially in channel, is one of the critical issue to put proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) to practical use. In this paper, channel flooding was investigated the pressure difference at cathode channel outlet. A ratio of pressure difference changes to 25, 50% as its variation rate. The pressure variable rate is reflected in dimensionless number  $FN$ . As a result, modified dimensionless number  $FN^*$  correctly predicted the channel flooding. This study analyzes that a variety of pressure difference is how to affect flooding at the cathode of the PEMFC.

**KEY WORDS** : PEMFC(고분자 전해질 연료전지), Cathode(공기극), Flooding(플러딩), Pressure difference (압력차)

### Nomenclature

F : faraday constant, C/mol  
 $\dot{m}$  : mass flow rate, kg/s  
MM : molecular weight, kg/kmol  
P : pressure, kPa  
T : temperature, °C  
 $\lambda$  : stoichiometry  
 $\varphi$  : relative humidity

$x$  : humidity ratio

### Subscripts

A : air  
in : inlet  
NET: net value  
out : outlet  
 $O_2$  : oxygen  
PR : water production  
s : saturation  
W : water

<sup>†</sup>Corresponding author : ydchoi@korea.ac.kr

[ 접수일 : 2009.7.31 수정일 : 2009.8.25 게재확정일 : 2009.10.23 ]

## 1. 서 론

PEMFC는 다른 종류의 연료전지와 비교하여, 기존의 확립된 기술인 메탄올 개질기의 적용이 쉽고 작동온도가 낮으며 부하변화에 대한 응답특성이 빠르며 간단한 디자인, 부피 및 무게에서도 작다는 장점으로 인해 분산형 전원공급 장치 및 휴대용 전원장치로서 주목받고 있다<sup>1)</sup>. PEMFC는 수소와 산소를 반응시켜 전기에너지, 열 그리고 물을 얻는다. 따라서 연료전지에서 발생하는 물과 열관리가 가장 중요한 주제로 수년 동안 연구되고 있다. 연료전지의 작동원리에 의해 연료극에서 전자와 분해된 수소 이온이 전해질을 통해 공기극쪽으로 이동하게 되며, 공기극에서 산소가 전자를 받아 전해질을 통해 공기극으로 투과된 수소이온과 반응하여 물이 발생하게 된다. 이러한 전기화학반응이 점차 진행됨에 따라 발생수가 전해질의 기공을 막게 되어, 전해질의 이온전도도가 떨어지게 되고 촉매층을 덮어버리게 되는데 이를 'GDL/CL 플러딩'이라고 한다<sup>2)</sup>. 또한 발생수가 공기극에 점차 축적되고 응축되어 물기둥 형태로 유로 내부에 형성되어 반응물의 원활한 공급을 막게 되는데 이를 '채널 플러딩'이라 한다<sup>3)</sup>. 이러한 플러딩 현상은 주로 고전류밀도영역에서 발생하게 되는데, 반응물의 원활한 공급을 막아 반응물의 비정상적인 농도구배를 만들게 되고 이로 인해 연료전지의 성능을 급격히 떨어뜨리게 된다. 이렇듯 유로 내에서 발생하는 물관리가 연료전지의 성능을 좌지우지하는 큰 요인이 된다<sup>4)</sup>. 이러한 플러딩 현상에 따른 잠재적인 문제들로 인해서 수많은 연구들이 플러딩 현상을 제거할 수 있는 방법을 제안하였다. 이러한 방법들은 연료극뿐만 아니라 공기극내에서의 물 제거를 기반으로 하고 있다. Wang 등이 제시한 물 제거 방법은 기체확산층에서의 모세관 현상을 이용하는 것이다<sup>5)</sup>. 기체확산층은 다공성 매질로 만들어 지고 분리판과 공기극, 연료극 사이에 위치하고 있다. 물은 이 물질 내 기공을 통하여 모세관 현상에 의해 빨아들여진다. 또 다른 물 제거방법은 공기 또는 산소를 당량비 보다 많은 양을 공기극을 통해

공급하는 것이다<sup>6)</sup>. 전형적인 산소의 초과비는 2이다. 즉, 산소는 화학반응을 위해 필요한 정량보다 2배만큼 더 공급되어 유로에 축적된 물을 쓸어버릴 수 있는 것이다. 또한 Zhang 등은 기체확산층과 PEMFC의 가스유로로부터 물의 이동 그리고 제거에 관해 실험적, 이론적 연구를 통하여 기체확산층 표면과 가스 유로에서의 물 분포의 관찰을 수행하였다<sup>7)</sup>. 기체확산층의 표면으로부터의 물방울 형성과 발생을 특징화 하였고, 그 표면으로부터의 물 제거 방법을 제시하였다. 하지만 이러한 PEMFC에 대한 연구는 아직까지도 그 양은 많지 않고 대부분 연료전지의 물 관리에 대한 기초연구에 머물고 있다.

본 연구에서는 공기극 출구에서의 압력을 조절하여 연료전지 공기극의 출구 압력을 감소시켜줌으로써 플러딩 현상을 억제시킬 수 있는 새로운 설계인자를 제시하는데 목표가 있다.

## 2. 실험

### 2.1 실험 장치

#### 2.1.1 성능 실험 장치

공기극 출구에서의 압력변화가 연료전지의 성능과 플러딩에 어떠한 영향을 미치는지를 확인하기 위해 Fig. 1과 같은 실험 장치를 통해 측정하였다. 실험에 사용한 연료극 유로의 폭과 깊이는 1mm, 0.6mm이며, 공기극 채널의 폭과 깊이는 1mm, 0.9mm이다. 질량유량계에 99.9%의 공기와 수소를 통과시켜 유량을 조절하였고 공기와 수소 모두 습도를

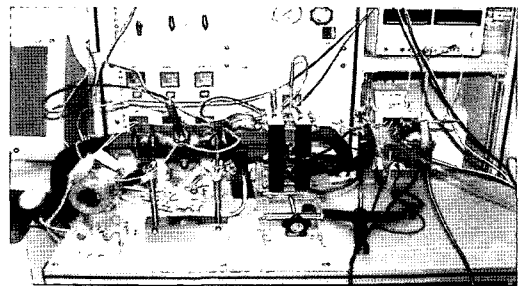


Fig. 1 Experimental setup.

일정하게 유지시키기 위해 가습기를 설치하여 90%의 상대습도를 유지시켰다. 가습기를 통과한 공기와 수소는 일정한 온도를 유지시키기 위해서 라인 히터를 설치하여 온도를 조절하였으며, 성능 셀의 입출구의 압력, 온도 그리고 상대습도를 측정하기 위해서 압력계, 차압계, thermocouple과 습도계를 설치하였다. 또한 셀의 온도가 일정한 상태에서 플러딩 현상을 관찰하기 위해서 히터를 삽입하여 분리판의 온도를 조절하였다.

### 2.1.2 실험 조건

본 연구에서는 공기극 출구에서의 압력변화에 따른 연료전지의 성능과 플러딩에 대해 알아보기 위해 Table 1과 같은 조건으로 실험을 수행하였다. 공기극의 플러딩 현상을 관찰하기 위해서 연료극의 경우 당량비와 입구온도, 셀 온도를 고정시켜 실험을 수행하였다.

### 2.1.3 측정 장치

본 연구에서는 3M에서 제작한 25cm<sup>2</sup>의 활성면적과 공기극에서의 백금함량은 0.4mg/cm<sup>2</sup>이고 두께가 0.03mm인 고분자 전해질 막(MEA)을 사용하였으며, 전류와 전압을 조절 및 측정을 하기 위해서 300W DC-Loader를 사용하였다. 입출구의 압

력을 측정하기 위해서 YOKOGAYA사의 Model - EJA110A 차압계, Model- EJA530A 압력계를 사용하였고, 연료극과 공기극의 유량을 조절하기 위해서 BRONKHORST사의 EL-FLOW F-201C를 사용하였다. 공기극 입구와 출구의 상대 습도를 측정하기 위해서 VAISALA사의 HMT330 Series를 사용 하였다.

## 3. 플러딩 현상

### 3.1 기체 유량의 영향

공기극에 발생하는 플러딩 현상에는 기체 유량도 중요한 인자이다. 공기극과 연료극 사이의 전기 화학 반응이 일어날 때 공기극에 필요한 산소의 질량유량은 다음과 같다.

$$\dot{m}_{O_2} = \frac{MM_{O_2} \cdot I}{4F} \quad (1)$$

출구부의 공기 질량유량은 연료전지내의 전기화학반응에 의해 공기 중의 산소의 질량유량이 없어지게 된다. 따라서 출구부의 공기 질량유량은 입구부의 공기 질량유량과 반응에 필요한 산소 질량유량의 차이와 같으며 다음 식으로 나타낼 수 있다.

$$\dot{m}_{A,out} = \dot{m}_{A,in} - \dot{m}_{O_2} \quad (2)$$

또한 입구부 공기의 부피유량은 질소 78%, 산소 21%, 아르곤 1%이며 전극 전면에서 반응이 원활이 진행되도록 하기 위해 전기화학반응에 필요한 공기량보다 과량의 가스를 공급하게 된다. 입구부 공기 질량유량은 당량비를 사용하여 다음 식으로 나타낼 수 있다.

$$\dot{m}_{A,in} = \frac{MM_A \cdot I \cdot \lambda}{0.21 \cdot 4F} \quad (3)$$

### 3.2 습도의 영향

플러딩 현상은 온도와 습도도 중요한 인자이다.

Table 1 Operating initial condition

RH [%]	Inlet Temperature [°C]	Current Density [A/cm <sup>2</sup> ]	Back Pressure [%]	Stoichiometry	Flow Rate [cc/min]	
					Anode	Cathode
90	50	0.4	0	1.5	120	289
			0		211	506
		0.7	25		211	506
			50		211	506
		0.9	0		271	650
			25		271	650
		0.9	50		271	650
			1.2		25	361
		50			361	867

입구부의 습도비(humidity ratio :  $x$ )는 다음과 같다.

$$x_{in} = \frac{MM_W}{MM_A} \cdot \frac{\varphi_{in} \cdot p_s(T_{A,in})}{p_{in} - \varphi_{in} \cdot p_s(T_{A,in})} \quad (4)$$

여기서  $\varphi$ 는 상대습도이다. 출구부의 공기분자 질량은 전기화학반응에 의해 산소 분자질량이 사용되어지기 때문에 수정되어야 한다. 따라서 출구부의 습도비는 다음 식으로 나타낼 수 있다.

$$x_{out} = \frac{MM_W}{MM_A^*} \cdot \frac{\varphi_{out} \cdot p_s(T_{A,out})}{p_{out} - \varphi_{out} \cdot p_s(T_{A,out})} \quad (5)$$

플러딩 현상은 연료전지 공기극의 당량비와 습도의 영향이 지배적이다. 특히 플러딩이 채널에서 발생하기 위해서는 채널을 통과하는 물의 양보다 전기화학반응에 의해 생성된 물의 양이 많아야 한다. 전기화학반응에 의해 생성된 물의 질량유량과 채널을 통과하는 물의 질량유량은 다음과 같다<sup>8)</sup>.

$$\dot{m}_{w,PR} = \frac{MM_W \cdot I}{2F} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} \dot{m}_{w,NET} &= \dot{m}_{w,out} - \dot{m}_{w,in} \\ &= \dot{m}_{A,out} \cdot x_{out} - \dot{m}_{A,in} \cdot x_{in} \end{aligned} \quad (7)$$

생성된 물의 질량유량과 채널을 통과하는 물의 질량유량의 비를 통해 유로내의 플러딩이 생기는지를 이론적으로 확인할 수 있고 식으로 나타내면 다음과 같다<sup>9)</sup>.

$$FN = \frac{\dot{m}_{w,PR}}{\dot{m}_{w,NET}} \quad (8)$$

위의 무차원변수  $FN$ 이 1보다 클 경우에는 공기극의 출구를 통해 밖으로 배출되는 물의 양보다 유로 내부에서 생성되는 양이 더 많은 것을 의미하게 된다. 즉, 이러한 경우에 공기극의 유로 내부에서 플러딩이 발생했다고 예측할 수 있다. Fig. 2는 전류밀도가 0.4, 0.7, 0.9A/cm<sup>2</sup> 일 경우의 전

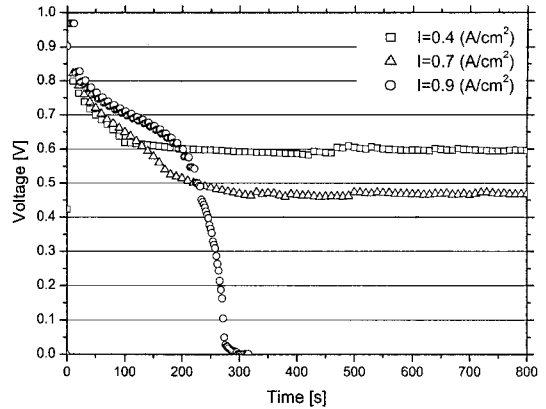
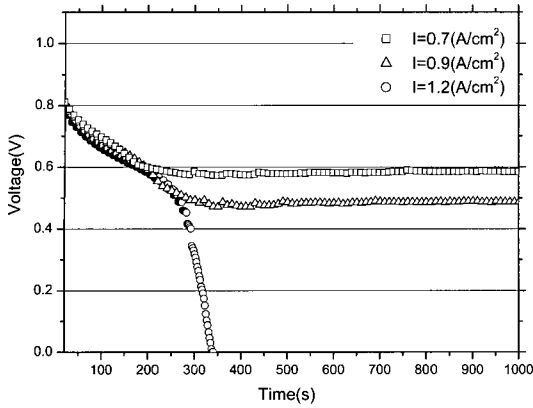


Fig. 2 Voltage as a function of times with current density 0.4, 0.7, 0.9A/cm<sup>2</sup>.

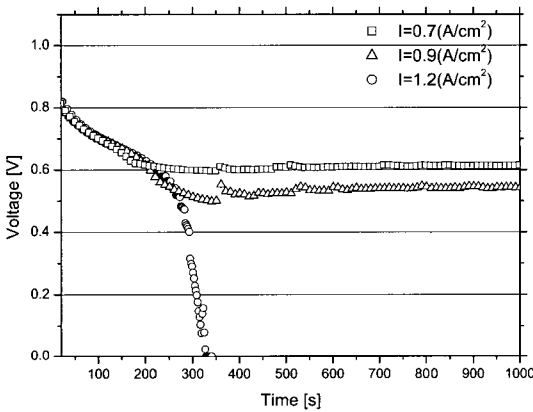
압의 변화를 시간에 따라 나타낸 것이다. 전류밀도 0.9A/cm<sup>2</sup>에서 연료전지의 성능이 급격히 감소하여 결국 작동이 멈추게 된다. 이러한 고전류밀도 영역에서 연료전지의 성능저하는 플러딩에 의한 것이다<sup>9)</sup>. 이 경우의 무차원변수  $FN$ 의 값은 1보다 크게 나타난다.

### 3.3 압력의 영향

본 실험에서는 연료전지 공기극 출구에서의 압력변화에 따른 성능변화 및 플러딩 현상을 관찰하기 위해 기존 실험의 공기극 출구 압력에서 각각 25, 50%의 비율로 압력을 감소시켜서 실험을 수행하였다. 이 경우의 시간에 따른 전압의 변화를 Fig. 3에 나타내었다. 기존 실험에서는 전류밀도 0.9A/cm<sup>2</sup>에서 성능이 급격히 감소하였지만, 공기극 출구 압력을 25, 50%의 비율로 감소시켰을 경우에는 1.2A/cm<sup>2</sup>에서 연료전지의 성능이 급격히 감소하여 작동이 멈추게 되었다. 각 경우에서의 무차원변수  $FN$ 의 값의 변화를 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 4에서 알 수 있듯이 공기극 출구에서 압력변화를 줄 경우에는 기존의 무차원변수  $FN$ 이 잘못된 값을 예측하는 것을 알 수 있다. 따라서 이와 같이 공기극에 압력변화가 생길 경우에는 그 변화율을 식 (8)에 반영해야 하며, 그 결과를 식 (9)에 나타내었다<sup>10)</sup>.



(a) 25% back pressure

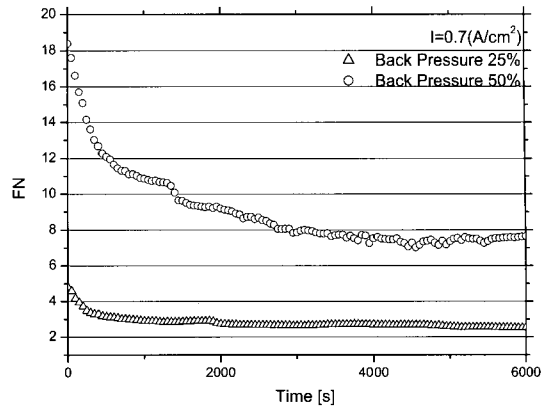


(b) 50% back pressure

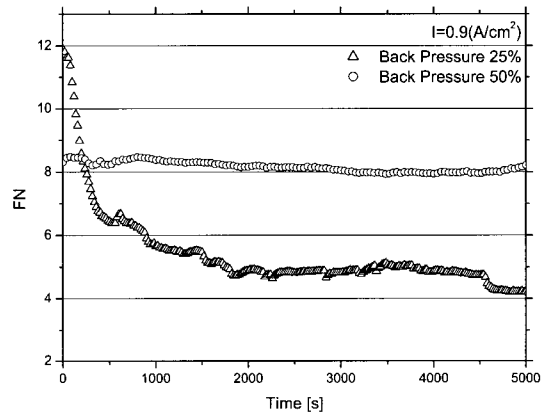
Fig. 3 Voltage as a function of times at current density 0.7, 0.9, 1.2A/cm<sup>2</sup> (a) 25% back pressure and (b) 50% back pressure.

$$FN^* = \frac{m_{W,PR}}{m_{W,NET}} \times \frac{P_{out,variable\ rate}}{P_{in,variable\ rate}} \quad (9)$$

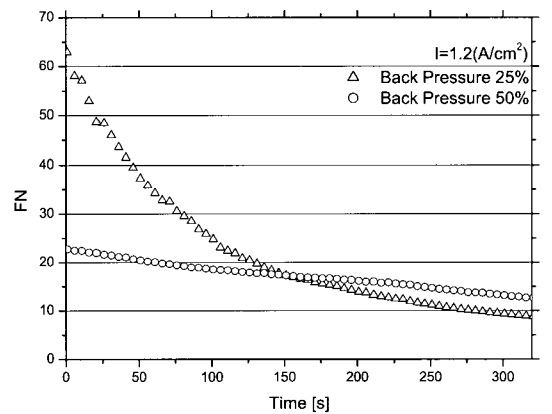
Fig. 4의 결과를 수정된 무차원변수인  $FN^*$ 로 나타내면 Fig. 5와 같은 결과를 얻을 수 있다. 수정된 무차원변수  $FN^*$ 의 변화를 살펴보면, 전류밀도 0.4A/cm<sup>2</sup>일 경우에는 압력변화율을 반영한 두 경우 모두  $FN^*$  값이 1보다 작아 유로내에 플러딩이 발생하지 않았다는 것을 알 수 있다. 또한, Fig. 5(b)를 보면, 전류밀도 0.9A/cm<sup>2</sup>에서 기존 실험의 경우에는 무차원변수  $FN$ 의 값이 1보다 크게 되어, 공기극 유로내에 플러딩이 발생 하였다는 것을 알



(a) current density 0.7A/cm<sup>2</sup>

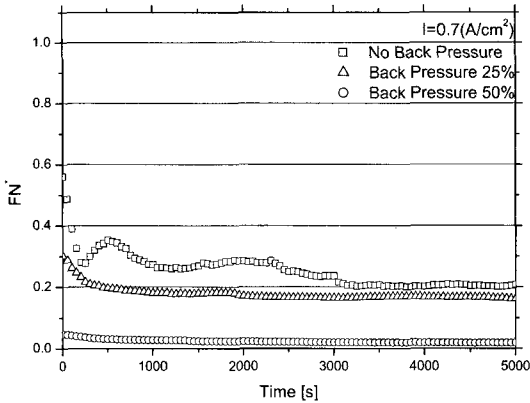


(b) current density 0.9A/cm<sup>2</sup>

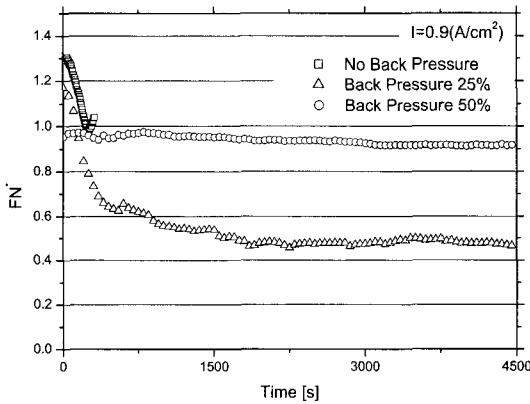


(c) current density 1.2A/cm<sup>2</sup>

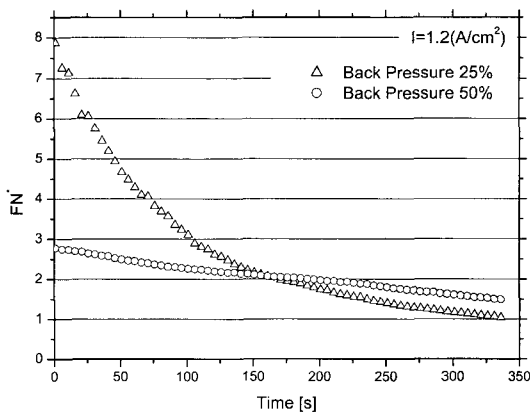
Fig. 4 Dimensionless number, FN, as a function of times at different back pressure ratio (a) current density 0.7A/cm<sup>2</sup>, (b) current density 0.9A/cm<sup>2</sup> and (c) current density 1.2A/cm<sup>2</sup>.



(a) current density  $0.7A/cm^2$



(b) current density  $0.9A/cm^2$



(c) current density  $1.2A/cm^2$

Fig. 5 Modified dimensionless number,  $FN^*$ , as a function of times at different back pressure ratio (a) current density  $0.7A/cm^2$ , (b) current density  $0.9A/cm^2$  and (c) current density  $1.2A/cm^2$

수 있다. 하지만 압력변화율을 반영한 두 결과 모두 수정된 무차원변수  $FN^*$ 의 값이 1보다 작게 되어 플러딩이 발생하지 않는 것을 알 수 있다. 반면에 전류밀도가  $1.2A/cm^2$ 일 경우에는 두 경우 모두  $FN^*$ 값이 1보다 크게 되어 공기극 유로내에 플러딩이 발생하였다는 것을 알 수 있다. 하지만, 공기극 채널의 입구부에서 출구부까지의 각 길이에 대해 압력의 분포가 다르게 나타나기 때문에 플러딩의 정도와 각 부분에서의 수분의 양도 다르게 나타난다. 따라서 이에 대한 연구가 추후 이뤄져야 한다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 연료전지의 공기극 출구압력의 변화를 주어 성능 측정 및 플러딩 현상을 예측할 수 있는 변수를 제시하기 위한 실험을 수행하였다. 본 연구의 결론은 다음과 같다.

- 1) 고분자 전해질 연료전지의 성능 실험 결과 고 전류밀도 영역에서 성능이 급격히 저하되었고 유로내에서 발생하는 플러딩현상이 주요한 원인이었다.
- 2) 연료전지의 출구 온도, 습도, 압력은 무차원변수  $FN$ 에 영향을 미치게 된다. 하지만 공기극 출구의 압력을 감소시킬 경우 기존의 무차원변수  $FN$ 은 잘못된 값을 예측하였다.
- 3) 본 연구에서는 수정된 무차원변수  $FN^*$ 를 제시하였고, 출구에서의 다양한 조건에서도 플러딩을 정확히 예측하였다.

#### 후 기

본 과제는 한국과학기술재단 연구과제(R01-2008-000-12299-0)로 수행된 것이며 이에 감사한다.

#### 참 고 문 헌

- 1) T. V. Nguyen and M. W. Knobbe, "A Liquid Water Management Strategy for PEM Fuel Cell Stacks", J. Power Sources, Vol. 114, 2003, pp.

- 70-79
- 2) X. Liu, H. Guo and C. F. Ma, "Water Flooding and Pressure Drop Characteristics in Flow Channels of Proton Exchange Membrane Fuel Cells", *Electrochimica Acta*, Vol. 52, 2007, pp. 3607-3614.
  - 3) T. Ous and C. Arcoumanis, "Visualisation of Water Droplets During the Operation of PEM Fuel Cells", *J. Power Sources*, Vol. 173, 2007, pp. 137-148.
  - 4) S. A. Grigor'ev, Y. R. Alanakyan, V. N. Fateev and V. D. Rusanov, "Modeling of the Mass Transfer in Proton-Exchange-Membrane Fuel Cells", *Dokl. Phys. Chem.*, Vol. 382, 2002, pp. 31-34.
  - 5) M. Wang, H. Guo and C. Ma, "Temperature Distribution on the MEA Surface of a PEMFC with Serpentine Channel Flow Bed", *J. Power Sources*, Vol. 157, 2006, pp. 181-187.
  - 6) K. Tuber, D. Pocza and C. Hebling, "Visualization of Water Buildup in the Cathode of a Transparent PEM Fuel Cell", *J. Power Sources*, Vol. 124, 2003, pp. 403-414.
  - 7) F. Y. Zhang, X. G. Yang and C. Y. Wang, "Liquid Water Removal from a Polymer Electrolyte Fuel Cell", *J. Electrochemical Society*, Vol. 153, 2006, pp. 225-232.
  - 8) M. G. Zhang, X. G. Yang and C. Y. Wang, "Experimental Analysis of Cathode Flow Stoichiometry on the Electrical Performance of a PEMFC Stack", *Int. J. Hydrogen Energy*, Vol. 32, 2007, pp. 710-716.
  - 9) K. R. Kim, S. H. Han, D. K. Ahn and Y. D. Choi, "Experimental Studies on Flooding in the PEM Fuel Cell at Various RH", *Proc. of the KSME*, Vol. 11, 2008, pp. 2385-2389.
  - 10) S. H. Han, K. R. Kim, D. K. Ahn and Y. D. Choi, "Experimental analysis for dimensionless number in cathode channels of polymer electrolyte membrane fuel cell with difference head losses", *Proc. Inst. Mech. Eng. Part C-J. Eng. Mech. Eng. Sci.*, accepted for publication, DOI : 10.1243/0954462JMES1757.