

원통형 자연대류 방식 PEMFC 개발

이강인*, 이세원*, 박민수**†, 주종남*

*서울대학교 기계항공공학부 대학원, **원광대학교 기계자동차공학부

The Development of Cylinder Shaped Air-breathing PEMFC

KANGIN LEE*, SEWON LEE*, MINSOO PARK**†, CHONGNAM CHU*

*School of Mechanical and Aerospace Engineering, Seoul National Univ., San 56-1 Shinlim-dong, Gwanak-gu, Seoul, 151-744, Republic of Korea

**Division of Mechanical and Automotive Engineering, Wonkwang Univ., Iksan City, Jeonbuk, 570-749, Republic of Korea

ABSTRACT

Cylinder shaped air-breathing PEMFC has been developed to have small volume, low contact resistance and better air accessibility to the open cathode. This cylinder shaped design consists of an anode cylinder with helical flow channel and a cathode current collector with slits. The pressure distribution measurement according to the shapes was performed. The test result indicated that cylinder shaped fuel cell has better pressure distribution compared with the planar shaped fuel cell. The better pressure distribution was connected to the higher performance. The maximum power density of cylinder shaped fuel cell was about 20% higher than the planar shaped fuel cell. The maximum power density of the developed cylinder shaped air-breathing PEMFC with dry hydrogen was 220 mW/cm² and with humidified hydrogen was 293 mW/cm².

KEY WORDS : Cylinder shaped PEMFC(원통형 고분자 전해질 막 연료전지), Air-breathing(자연대류), Current collector(전류 컬렉터), MEA(막전극집합체), Flow-field(유로)

1. 서 론

고분자 전해질 막 연료전지(PEMFC: proton exchange membrane fuel cell)는 작동 온도가 비교적 낮고, 전력 밀도가 높은 장점을 가지고 있다. 이런 장점을 이용해 PEMFC를 자동차의 동력원, 소형 발전기, 휴대용 기기의 전원 등 다양한 분야

로의 응용을 위한 연구가 활발하다.

각 응용 분야에 따라 PEMFC를 적용하는 이유는 다양하다. 자동차의 동력원 및 소형 발전 시스템용 PEMFC는 화석 연료를 대체할 새로운 무공해 에너지원으로 연구되고 있다. 반면 휴대 기기용 전원으로서 PEMFC는 사용시간 증가에 연구의 초점이 맞춰져 있다. 수소 저장 장치의 에너지 저장 밀도가 2차 전지들보다 높기 때문이다¹⁾. 일례로 리튬 이온 배터리의 에너지 밀도는 350 Wh/l정도

†Corresponding author : pminsoo@wku.ac.kr

이나 메탈 하이드라이드(metal hydride)에 저장된 수소의 경우 에너지 밀도가 1050 Wh/l에 달한다²⁾.

PEMFC의 형태는 공기극 기체 공급방식에 따라 강제대류 방식과 자연대류 방식으로 나뉜다. 강제대류 방식은 펌프나 팬을 이용해 공기 또는 산소를 공급한다. 기체를 강제 공급하므로 성능이 높아지는 반면 펌프 및 팬 등의 부가장치 사용으로 시스템이 복잡해지며 추가적인 전력 소비가 불가피하다³⁾. 부피 및 중량의 증가도 문제점이다. 이와 비교해 자연대류 방식은 공기극을 대기 중에 노출시켜 산소와 물을 공급받는 구조이므로 기체 공급을 위한 별도의 부가장치가 필요 없다. 따라서 시스템을 간단하게 구성할 수 있고 추가 전력도 필요하지 않아, 휴대용 기기의 발전 방식으로서 많은 장점을 가지고 있다⁴⁾.

기존 자연대류 방식 PEMFC의 형태는 대부분 평판형(planar) 구조로 엔드플레이트(end plate), 유로판, MEA(membrane electrode assembly), 전류컬렉터(current collector) 등이 수직 적층된 형태이다. 이 평판형 구조는 소형화에 한계가 있다. 부피 감소를 위해 각 판의 두께를 얇게 제작할 경우 전류컬렉터의 전 면적에 충분한 압력을 가할 수 없어, 계면저항(contact resistance)이 증가하기 때문이다. 계면저항이 증가하면 전력 손실이 커져 성능이 감소한다⁵⁾.

이 같은 문제점을 극복하고자 나온 형태가 관형(tubular) PEMFC이다. 그동안 고체산화물 연료전지(SOFC: solid oxide fuel cell)에서는 열팽창 문제의 해결을 위하여 이미 관형 구조의 연료전지가 많이 연구되어왔다. 하지만, PEMFC에서는 아직 그 적용사례가 많지 않다⁶⁾. 관형 PEMFC는 주로 실리카(silica)와 같은 다공성 재료의 관 위에 MEA를 등글게 말고 그 위에 전류컬렉터를 다시 말은 구조이다⁷⁾. 이 구조는 공기극 전류컬렉터의 장력을 이용해 MEA와 전류컬렉터를 밀착시키므로 엔드플레이트가 필요 없다. 따라서 연료전지의 부피를 감소시킬 수 있다. 그리고 얇은 전류컬렉터를 사용하므로 대기와의 물질전달이 원활하게 이루어질 수 있어 성능 향상도 기대된다. 일례로

J. -F. Coursange는 평판형과 관형 PEMFC의 성능을 3차원 시뮬레이션으로 분석한 연구에서 관형 PEMFC가 더 높은 전류 밀도를 가질 수 있음을 보였다⁸⁾.

하지만, 위와 같은 기존의 관형 PEMFC는 다공성 구조를 이용해 수소를 공급하는 방식이다. 이 공급 방식은 물질전달이 다공성 구조 내에서의 확산을 통해 이루어진다. 이 방식은 물질전달이 기존의 연료전지와 같이 유로를 통해 이루어지는 것이 아니기 때문에 생성된 물의 배출이 용이하지 않고, 수소를 필요한 연료 소비량만큼 유로를 따라 흘러 보내는 것이 불가능하다. 이런 문제점을 해결하고자 본 연구에서는 기존의 다공성 관 형상이 아닌, 금속 원통에 수소 공급용 유로가 존재하는 새로운 방식의 원통형(cylinder) 자연대류 방식 PEMFC를 개발하였다.

2. 원통형 자연대류 PEMFC 제작

2.1 수소극 원통 제작

유로를 지닌 수소극 원통의 재질은 수소 공급 및 애노드로서의 역할을 수행하기 위하여 다음과 같은 조건들을 만족해야한다. MEA와 전류컬렉터 사이에 존재하는 계면저항을 최소화하기 위해 수소극 원통에 높은 압력이 가해지므로 이에 변형이 없어야한다. 또 유로 가공이 용이한 재질이어야 하며, 전류컬렉터 역할을 원활히 수행하기 위하여 전기전도성도 우수해야 한다. 알루미늄은 밀도가 낮으면서 이러한 조건을 잘 충족시킬 수 있으므로, 알루미늄을 이용해 수소극 원통을 Fig. 1과 같이 제작하였다. 가로 세로 모두 50 mm인 MEA를 원통에 말아서 부착해야 하므로 원통의 직경은 20 mm, 길이는 70 mm로 하였다. 원통면의 가장자리에는 수소 기체의 누설을 방지하기 위한 개스킷(gasket)이 설치된다.

유로는 원통면에 폭 1.2 mm, 깊이 1 mm의 나선형 형상으로 선반 가공하였다. 유로와 유로간의 간격은 0.8 mm이다. 나선형 유로의 시작점과 끝점에는 수소 공급을 위해 직경 1.2 mm의 구멍을 뚫

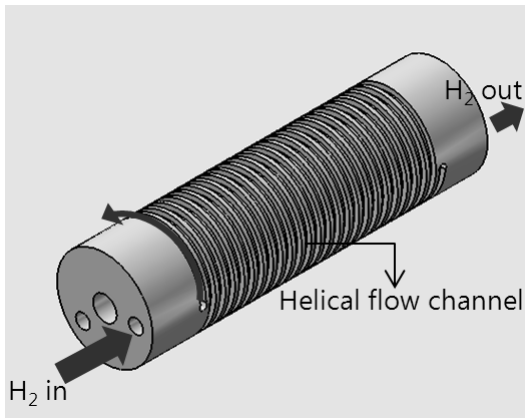


Fig. 1 Schematic of the cylinder shaped anode flow-field

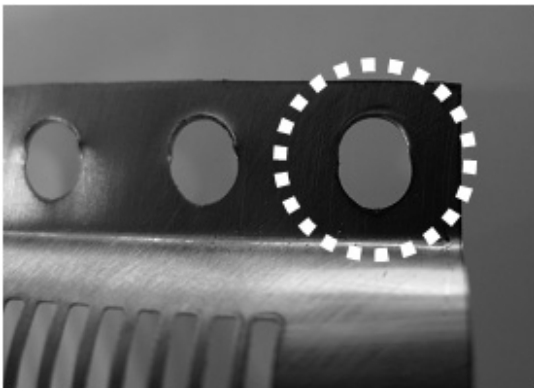


Fig. 2 The deformed hole figure of 0.3 mm STS plate

어 원통 내부로 유로를 연결하여, 원통 바닥면을 통해 수소의 입출입이 가능하게 하였다. 유로 가공이 끝난 후에는 알루미늄의 부식을 방지하고 우수한 전기전도성을 얻기 위해 금도금을 수행하였다. 일반적으로 금도금된 알루미늄은 흑연과 비슷한 성능을 낼 수 있다고 알려져 있다⁹⁾.

2.2 공기극 전류 컬렉터 제작

Green 등⁴⁾에 의하면 전류 컬렉터의 장력이 높을수록 계면 저항을 감소시켜 연료전지의 성능이 증가된다. 하지만 높은 장력을 얻기 위해 공기극

전류 컬렉터의 두께를 증가시키면 슬릿(slot)을 통한 물질전달과 열전달이 어려워져 성능이 하락할 수 있다. 반대로 두께를 감소시키면 체결 시 가해진 힘을 견디지 못하고 형상이 변형되거나 찢어질 수 있다. 따라서 전류 컬렉터는 체결 시 가해지는 장력을 견딜 수 있는 한도 내에서 얇은 두께의 판을 사용하는 것이 좋다.

공기극 전류 컬렉터의 두께를 결정하기 위해 0.5 mm 스테인리스 스틸(stainless steel)판과 0.3 mm 스테인리스 판 2가지로 체결 실험을 진행하였다. 그 결과 0.3 mm 판은 Fig. 2와 같이 볼트와 체결되는 부위가 가한 힘을 견디지 못하여 구멍의 직경이 크게 변화하는 것으로 나타났다. 이러한 변형으로 인해 기체의 누설이 발생하였고, 또한 전류 컬렉터의 장력이 감소하여 충분한 압력을 가하는 것이 불가능하였다. 하지만 0.5 mm 판을 이용한 경우에는 기체의 누설이 관찰되지 않았으며, Fig. 8 (b)의 결과에서 볼 수 있듯이 원하는 압력을 가할 수 있었다. 이상의 결과를 토대로 공기극 전류 컬렉터는 0.5 mm 두께의 스테인리스 스틸판을 이용하여 제작하였다.

공기극 전류 컬렉터의 슬릿들은 MEA 공기극면을 대기에 노출시켜 대기 중의 산소 및 수분이 접촉할 수 있도록 한다. 따라서 MEA를 사이에 두고 슬릿들과 수소극 나선형 유로는 1:1로 대응되어야 한다. 이를 위해 슬릿들이 수소극 나선형 유로의 유로 간 간격 0.8 mm에 따라 평행하게 배열되도록 Fig. 3과 같이 설계하였다. 전류 컬렉터의 중앙 부분에는 가로방향으로 각각의 슬릿들을 연결하면서 슬릿을 상하로 분할하는 부분을 두었다. 이 부분에 의해 2분할된 슬릿들이 평행하게 나열되어 있다. 이 가로방향으로 연결하는 부분은 원통형상으로 전류 컬렉터를 감을 때, 원치 않는 변형에 의해 슬릿 사이에 존재하는 림(rib) 부분의 위치가 틀어지는 것을 방지한다.

각 슬릿들의 가공은 상용 레이저 가공기를 이용하여 가공하였다. 가공 후에는 용이한 조립을 위해 수소극 원통형상을 따라 원형 형상으로 소성 변형시킨 후, 부식을 방지하고 전기 전도성을 향상시키

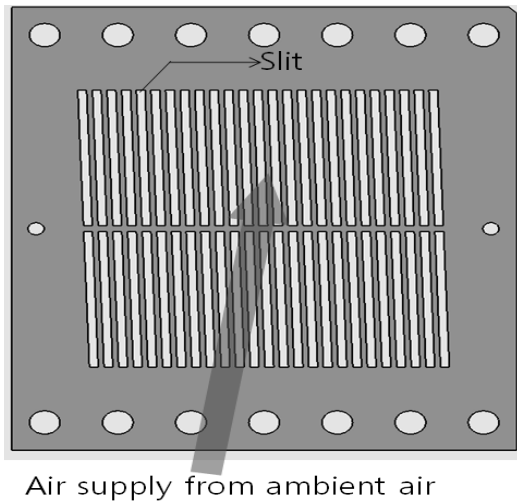


Fig. 3 Schematic of the cathode current collector

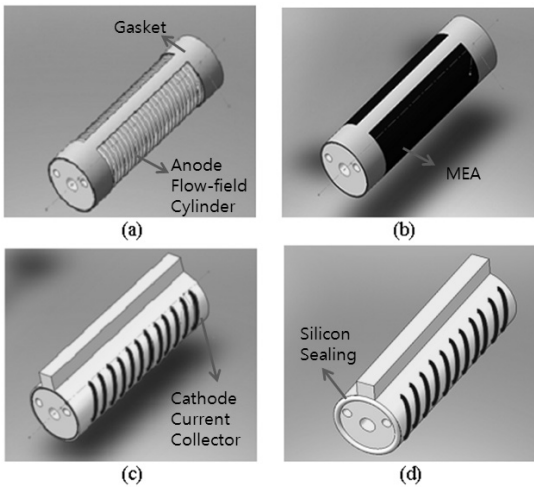


Fig. 4 Assembly procedure of the cylinder shaped air-breathing PEMFC a → b → c → d: (a) Wrap the gasket around anode flow-field cylinder, (b) Wrap the MEA, (c) Put the assembled part into the cathode current collector, (d) Silicon sealing

기 위해 금도금하였다.

2.3 원통형 PEMFC 조립

개발된 원통형 PEMFC의 조립 절차를 Fig. 4에 나타내었다. 수소 기체의 누설 방지를 위해 개스킷을 수소극 원통에 감싼 후, 반응면적 25 cm^2

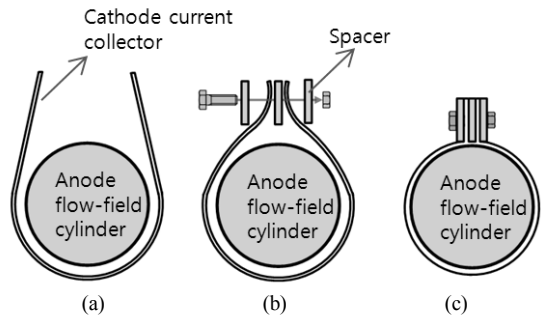


Fig. 5 Assembly procedure of the cathode current collector plate a → b → c: (a) Bend the cathode current collector plate around anode flow-field cylinder, (b) Set the spacers and tighten up the bolts and nuts, (c) Finish

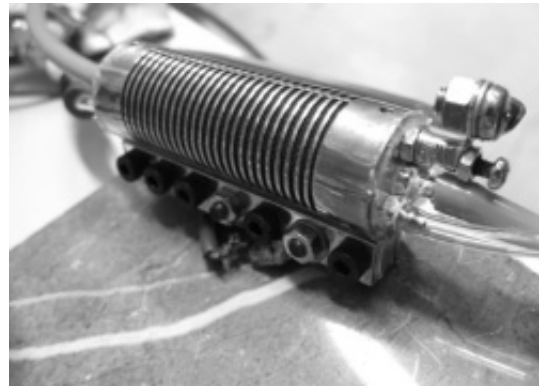


Fig. 6 The picture of fully-assembled cylinder shaped air-breathing PEMFC

의 MEA를 개스킷의 위치에 맞춰 원통에 감았다. 그 후 이를 공기극 전류 컬렉터에 넣고 수소극 원통의 나선형 유로와 공기극의 슬릿의 위치가 일치되게 조정하였다. 조정이 끝난 후에는 볼트와 너트로 체결하였다.

Fig. 5에서 볼 수 있듯이, 체결할 때에는 수소극 원통에 공기극 전류 컬렉터가 완전히 밀착될 수 있도록 직육면체의 스페이서(spacer)를 사용하였다. 스페이서를 이용한 체결이 끝난 후엔 각 부품 사이의 틈으로 수소가 누설되지 않도록 원통형 PEMFC의 양 끝단을 실리콘으로 실링(sealing)하였다. Fig. 6은 완성된 원통형 PEMFC에 전기 부하장치와 수소 공급용 관을 연결한 모습이다. 완성

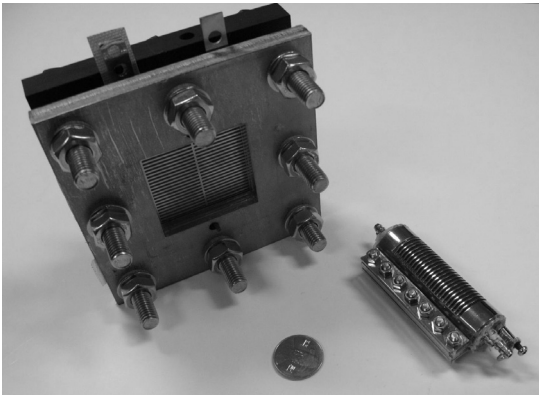


Fig. 7 The picture of the planar PEMFC(left) and cylinder shaped PEMFC(right)

된 전지의 총 부피는 약 35 cc이다.

3. 실험

3.1 압력 분포 측정

원통형 PEMFC가 전류 컬렉터에 충분한 압력을 고르게 가할 수 있는지 확인하기 위해, 압력 측정 필름을 MEA와 전류 컬렉터 사이에 넣고 압력 분포를 측정하였다. 그리고 그 결과를 기존 평판형 연료전지의 압력 측정 결과와 비교하였다. 압력 측정에 사용한 평판형 및 원통형 PEMFC는 Fig. 7과 같다. 평판형 PEMFC의 공기극 전류 컬렉터로는 두께 1 mm의 금도금 된 스테인레스 스틸 판을 이용하였다.

원통형 PEMFC의 공기극 전류 컬렉터에는 슬릿 사이의 립 위치를 고정하기 위해 중앙 부분에 가로방향으로 잘리지 않은 부분이 존재한다. 이 부분의 존재로 인해 유로 형상에 차이가 생겨 전체 접촉저항이 변할 수 있다. 따라서 평판형과 원통형의 성능 비교 실험에서 변인 통제를 위해 유로 형상을 원통형의 경우와 일치시켜야 한다. 이를 위해 평판형의 공기극 전류 컬렉터에도 원통형과 마찬가지로 중앙 부분에 가로방향으로 잘리지 않은 부분이 있도록 하였다.

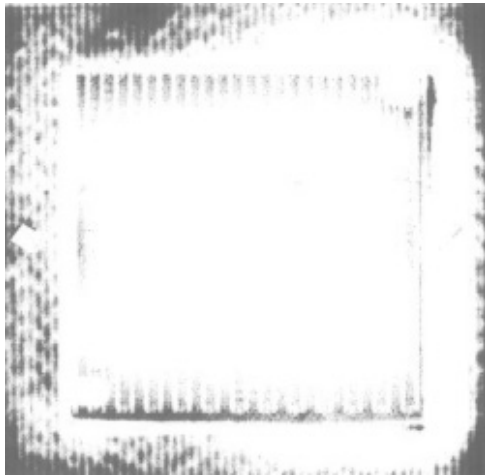
실험에 사용한 압력 측정 필름은 압력을 받을

경우 필름의 색이 흰색에서 붉은색으로 변하는 것이다. 본 실험에서는 압력 측정 필름 중 후지필름의 프리스케일 LLW 타입을 사용하였다. LLW 타입은 압력을 가하면 0.6 MPa부터 색이 점차적으로 짙어져서 2.5 MPa에서 완전히 붉은 색으로 변하는 특징을 가지고 있다. Chang 등¹⁰⁾은 유로판과 MEA 간의 계면저항을 일정 이하 수준으로 낮추기 위해서는 GDL(gas diffusion layer)에 1 MPa 정도의 압력이 가해져야한다고 밝히고 있다. 따라서 압력 측정 결과 필름의 색이 변하지 않는 부분은 체결압이 0.6 MPa 이하이므로 압력이 불충분한 상태로 판단할 수 있다.

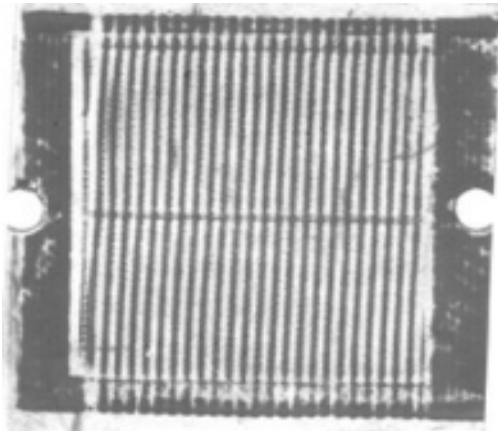
압력 측정 필름의 결과는 Fig. 8에 나타났다. 평판형 PEMFC의 경우 최대한 압력이 고르게 분포되도록 엔드플레이트와 1 mm 두께의 공기극 전류 컬렉터를 사용했다. 그럼에도 Fig. 8의 (a)번 결과에서 볼 수 있듯이, 배열된 슬릿들을 2분할하며 중앙 부분을 가로지르는 부분이 전혀 나타나지 않을 정도로 MEA 중앙 부분에 충분한 압력이 가해지지 않았다. 공기극 전류 컬렉터가 휘어지면서 엔드플레이트에서 가한 압력이 MEA 주변부에만 집중적으로 작용했기 때문이다. 이와 비교해 (b)번 원통형 PEMFC의 결과를 살펴보면 두께가 평판형의 절반인 0.5 mm 판을 이용했음에도 불구하고, 압력이 전 면적에 고르게 분포되어 있음을 확인할 수 있다. 이상의 압력 측정 실험 결과를 통해 원통형 PEMFC는 엔드플레이트 없이 얇은 두께의 전류 컬렉터 판만으로도 MEA 전 면적에 충분한 압력을 균일하게 가할 수 있음을 확인하였다.

3.2 성능 측정

성능 실험은 두 가지로 진행되었다. 첫 번째 실험은 수소를 가습하지 않은 상태에서 제작된 원통형 PEMFC와 기존의 평판형 PEMFC의 성능을 측정하여 비교하였다. 두 번째 실험은 별도의 동력공급이 필요하지 않은 상온 가습장치를 이용하여 가습된 수소를 원통형 PEMFC에 공급하여 성능을 알아보았다. 성능 측정 시, 전류를 상승시키며 전



(a)



(b)

Fig. 8 The results of the pressure measurement film: (a) Planar PEMFC, (b) Cylinder shaped air-breathing PEMFC

압을 측정할 때에는 전압이 안정되기 위한 시간이 필요하다. 그래서 30초씩 안정화 시간을 두고 전류를 500 mA씩 상승시키며 성능을 측정하였다.

3.2.1 원통형과 평판형 성능 비교

제작된 원통형 PEMFC의 성능을 알아보고 기존 평판형 PEMFC의 성능과 비교하기 위해, 수소극 무가습 성능 실험을 진행하였다. 수소의 공급량은 150 sccm이었고 자연대류 방식이므로 추가적 가열 및 공기극 가습은 하지 않았으며 실험 중 측

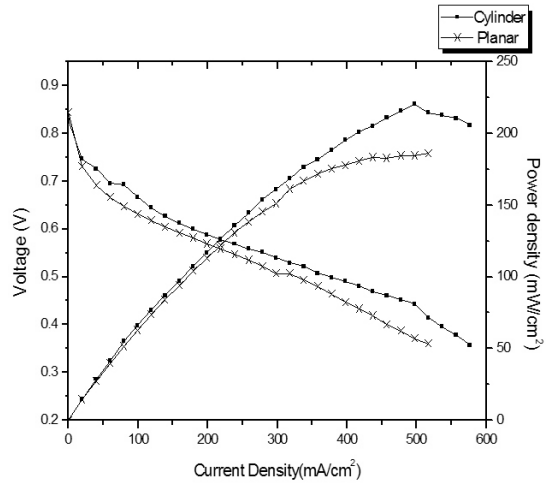


Fig. 9 Performance comparison between cylinder shaped PEMFC and planar PEMFC under dry hydrogen supply condition

정한 주변 대기의 온도 및 습도는 24°C, 20%RH였다. MEA는 미국 BCS Fuel Cells, Inc.에서 제작한 제품을 사용하였다. 이 MEA는 탄소 천(carbon cloth)재질의 GDL을 사용했고 전해질막으로 Nafion 212를 사용하였다. 공기극과 수소극 모두 촉매당 지량은 1.0 mg/cm²이다.

수소극 무가습 성능 실험 결과는 Fig. 9와 같았다. 전류밀도의 크기와 상관없이 전 영역에서 원통형의 성능이 더 우수하게 나타났다. 최대 전력 밀도는 원통형이 220 mW/cm²으로 평판형의 186 mW/cm²와 비교해 약 18%정도 높다. 이는 원통형의 낮은 계면 저항과, 상대적으로 얇은 공기극 전류 컬렉터 판의 사용으로 인한 원활한 대기와의 물질 전달에 기인한다고 추측된다.

3.2.2 원통형 PEMFC 수소극 가습 조건

수소극 가습 실험 시 온도는 대기온도와 동일하 24°C에서 100%RH로 가습된 수소를 공급하였다. 그 외의 조건들은 무가습 실험과 동일하게 설정하였다. 실험 결과 Fig. 10에서 보인바와 같이 가습된 수소를 사용한 경우가 무가습에 비해 월등히 성능이 높다. 전압이 0.6 V 일 때 전류 밀도와 전력 밀도는 각각 338 mA/cm²와 203 mW/cm²이다.

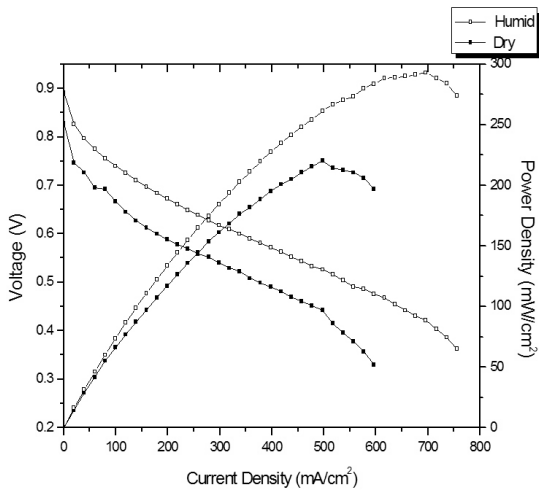


Fig. 10 Performance of the cylinder shaped PEMFC under humid and dry hydrogen supply condition

이는 무가습 실험과 비교하여 약 90%정도 상승한 수치이다. 최대 전력 밀도는 전압이 0.42 V, 전류 밀도가 696 mA/cm²일 때 293 mW/cm²였다. 이는 무가습 수소를 사용한 경우와 비교해 약 33%정도 향상된 수치이다.

가습 시 성능이 증가하는 이유는 가습된 수소가 공급됨으로서 MEA 전 면적에 걸쳐 전해질 막의 이온 전도도가 향상되었기 때문이다. 무가습한 수소를 공급한 경우에는 대기 중의 수분과 공기극에서 생성된 물의 백디퓨전(back-diffusion) 만으로는 전해질 막을 충분히 가습하기 힘들다. 따라서 전해질 막의 수분이 감소로 인해 이온 전도도가 낮아져 성능이 감소한다¹¹⁾. 하지만 적절히 가습된 수소를 공급하면 공급된 수분이 전해질막을 활성화 시켜 더 높은 성능을 얻을 수 있다. 수소극 상온 가습은 별도의 가열장치 없이 비교적 간단하게 가습이 가능하므로, 높은 출력이 필요한 경우에는 상온 가습 장치의 추가를 고려해 볼 수 있을 것이다.

4. 결 론

본 연구에서는 원통형 자연대류 방식 PEMFC를 개발하였다. 수소 공급용 원통은 직경 20 mm

의 알루미늄 봉에 나선형 유로를 가공한 후 금도금하여 제작 했다. 엔드플레이트 및 유로관의 기능을 함께하는 공기극 전류 컬렉터 판은 0.5 mm 스테인레스 스틸 판으로 레이저 가공 후 금도금하였다. 성능 측정 결과 무가습한 수소를 공급한 경우에는 원통형의 최대 출력이 평판형과 비교해 약 18%이상 상승한 220 mW/cm²이었다. 가습한 수소를 공급한 경우에는 293 mW/cm²이었다. 기존의 평판형 PEMFC와 비교하여 본 연구에서 개발된 원통형 PEMFC는 다음과 같은 장점을 지니고 있다.

- 1) 원통형 PEMFC는 MEA 반응 면 전체에 충분한 압력을 고르게 줄 수 있다. 이는 MEA와 전류 컬렉터 간의 계면저항을 감소시켜, 높은 전류밀도에서 출력을 상승시킨다.
- 2) 원통형 형상을 이용하므로 엔드 플레이트가 필요하지 않아 부피 감소가 가능하다.
- 3) 평판형 PEMFC보다 얇은 캐소드 전류 컬렉터의 사용이 가능하므로 대기와의 물질 전달 및 열전달이 활발해 진다. 이를 통해 연료전지의 성능이 향상된다.

참 고 문 헌

- 1) 이세원, 이강인, 박민수, 주종남, “Cathode에 따른 소형 PEM 연료전지의 성능변화”, 한국수소 및 신에너지학회논문집, Vol. 19, No. 4, 2008, pp. 283-290.
- 2) C. Hebling, A. Heinzl, “Portable fuel cell systems”, Fuel Cells Bulletin(July), 2002, pp. 8-10
- 3) 이현근, 오병수, 정귀성, “PEM 연료전지 자동차 적용을 위한 성능실험에 관한 기초연구”, 한국수소 및 신에너지 학회논문집, Vol. 11, No. 3, 2000, pp. 137-147.
- 4) J. Kim, J. Lee, K. Choi, H. Chang, “Development of planar, air-breathing proton exchange membrane fuel cell systems using stabilized sodium boro-

- hydride solution”, J. Power Sources, Vol. 185, 2008, pp. 881-885.
- 5) J. Hwang, H. Hwang, “Parametric studies of a double-cell stack of PEMFC using Grafoil™ flow-field plates”, J. Power Sources Vol. 104, 2002, pp. 24-32.
 - 6) K. J. Green, R. Slee, J. B. Lakeman, “The development of lightweight, ambient air breathing, tubular PEM fuel cell”, J. New Mat. Electrochem. Systems, Vol. 5, 2002, pp. 1-7.
 - 7) R. Yu, G. Cao, X. Liu, Z. Li, W. Xing, X. Zhu, “Fabrication of support tubular proton exchange membrane fuel cell”, J. Fuel Cell Science and Technology, Vol. 4, 2007, pp. 520-524.
 - 8) J. -F. Coursange, A. Hourri, J. Hamelin, “Performance comparison between planar and tubular-shaped PEM fuel cells by three-dimensional numerical simulation”, Fuel Cells, Vol 3, No. 1-2, 2003, pp. 28-36.
 - 9) G. O. Mepsted, J. M. Moore, “Performance and durability of bipolar plate”, Vol. 3 W. Vielstich, A. Lamm, H. A. Gasteiger(Edi), “Hand book of fuel cells”, Wiley, UK, 2003, pp. 286-293.
 - 10) W. R. Chang, J. J. Hwang, F. B. Weng, S. H. Chan, “Effect of clamping pressure on the performance of a PEM fuel cell”, J. Power Sources, Vol. 166, 2007, pp. 149-154.
 - 11) F. Barbir “PEM Fuel Cells: Theory and Practice”, Elsevier Academic Press, USA, 2005, pp. 115-145.