

## 운전 조건에 따른 PEMFC 스택 열 관리

손익제<sup>†</sup>, 이종현\*, 남기영\*, 고재준\*, 안병기\*

\*현대자동차

## The Heat Management of PEM Fuel Cell Stack

IKJAE SON<sup>†</sup>, JONGHYUN LEE\*, GIYOUNG NAM\*, JAEJUN KO\*, BYUNGKI AHN\*

\*Hyundai Motor Company, 104 Mabuk-dong, Giheung-gu, Youngin-si, Gyeonggi-do, 446-912, Korea

### ABSTRACT

PEM fuel cell produces electric power, water and heat by the electrochemical reaction of hydrogen and oxygen. The heating value is dependent on the molar enthalpy of vaporization of product water and the performance loss. In this paper, the heating value of fuel cell stack has been studied under various stack operating temperatures to achieve more efficient heat management. A technology using the molar enthalpy of vaporization of product water is suggested to reduce heat-up time during start-up of a fuel cell vehicle.

**KEY WORDS** : Heat management(열관리), Higher(gross) heating value(총발열량), Lower(net) heating value(순발열량), Radiant heat value(방열량), Neutron visualization(중성자가시화)

### Nomenclature

$C_p$  : specific heat, J/g/°C  
 $I$  : current, A  
 $N$  : cell Number  
 $P$  : stack power, kW  
 $Q_w$  : coolant radiant heat value, kW  
 $Q_{s,steam}$  : sack heating value, kW  
 $Q_{s,liquid}$  : stack heating value, kW  
 $T$  : temperature, °C  
 $V$  : cell average potential, V  
 $m$  : coolant mass, g  
 $\Delta H_f$  : formation enthalpy, kJ/mol

$\Delta T$  : coolant temperature difference between inlet and outlet, °C

### Subscripts

$H_2$  : hydrogen  
 $O_2$  : oxygen  
 $H_2O$  : water  
MEA : membrane electrode assembly  
GDL : gas diffusion layer  
LHV : lower heating value  
HHV : higher heating value  
BOL : begin of life

<sup>†</sup>Corresponding author : oo487@hyundai.com

[ 접수일 : 2010.5.26 수정일 : 2010.6.22 게재확정일 : 2010.6.25 ]

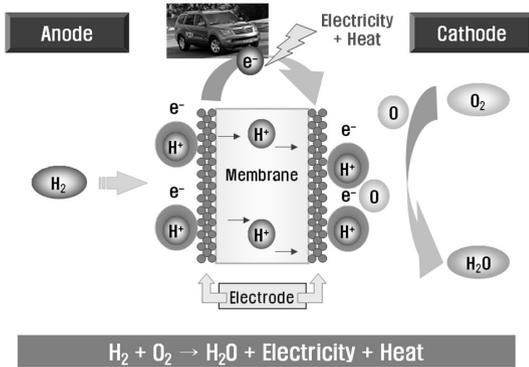


Fig. 1 Fuel cell stack reaction fundamentals.



Fig. 2 15cell stack test module.

## 1. 서 론

고분자 전해질형 연료전지는 Fig. 1과 같이 연료인 수소가 가진 화학적 에너지를 전기적 에너지로 변화시켜 사용하는 에너지 변환장치로 전기화학 반응의 결과 부산물로 물과 열이 생성된다.

연료전지의 발생열은 전위의 하락에 의해 발생되는데 그 원인으로는 활성화 분극, 저항분극, 농도 분극 손실 등이 있다. 또한 반응물인 물의 액체 및 기체 상태에 따라 상이한 발열 특성을 나타낸다<sup>1-3)</sup>. 그러나 현재 냉각 시스템 및 냉시동 연구를 위한 스택 발열 특성은 주로 기체 상태만을 고려하여 진행되고 있다<sup>4-6)</sup>.

본 연구에서는 금속분리판을 적용한 대면적 스택을 이용하여 스택 운전 온도 및 냉각수 유량을 변화시켜 스택의 출력 및 냉각수의 방열량을 계산하였다. 그리고 이론 발열량과 비교하여 생성수의 상태를 판단하고 스택의 발열 특성을 분석하였다. 또한 생성수 상태 변화를 확인하기 위해 중성자 가시화 기법을 이용하여 스택 내부의 물량 변화를 측정하였다<sup>7,8)</sup>.

마지막으로 스택의 발열 특성에 대한 이해를 바탕으로 연료전지 차량의 운전 전략 및 냉각 시스템 사양 선정에 대한 활용 방안을 제시하고자 한다.

## 2. 실험 장치 및 방법

### 2.1 스택 구성 및 평가 장치

연료전지 스택의 구성 부품 중 분리판은 당사에

서 개발중인 대면적(반응면적 300cm<sup>2</sup> 이상) 금속 분리판을 적용하였다. 그리고 상용품인 막-전극 접합체(MEA)와 carbon felt type의 가스확산층(GDL)을 사용하여 Fig. 2와 같이 15셀 스택을 제작하였다.

스택 평가는 스택 공급 냉각수 유량 및 냉각수 온도 조절이 가능하고 전자부하 용량이 최고 5kW 인 평가 장치를 이용하였다.

### 2.2 스택 운전 조건

스택 발열 특성 평가를 위해 스택 운전 온도(냉각수 입구 온도 기준)를 45~75°C의 온도 범위에서 10°C 간격으로 조절하여 스택의 BOL 출력 성능을 평가하였다. 냉각수는 초순수를 이용하였으며 0.8LPM 간격으로 2.4~7.2LPM의 유량 범위에서 스택의 발열 특성을 평가하였다.

이 외 반응가스들의 화학 양론비는 수소를 사용한 anode측은 1.5, 공기를 사용한 cathode측은 2.0으로 고정하였다. 상대습도는 anode, cathode 각각 입구 50%로 고정하였다. 또한 운전 압력은 anode측의 운전 압력을 cathode측 보다 높게 유지하였다.

스택 출력 성능은 전류밀도 0.16~1.20A/cm<sup>2</sup> 범위에서 평가하였다. 그리고 운전 조건별로 각각 10분씩 정전류 유지하여 스택 운전 온도 및 전압 안정성을 확인하였다.

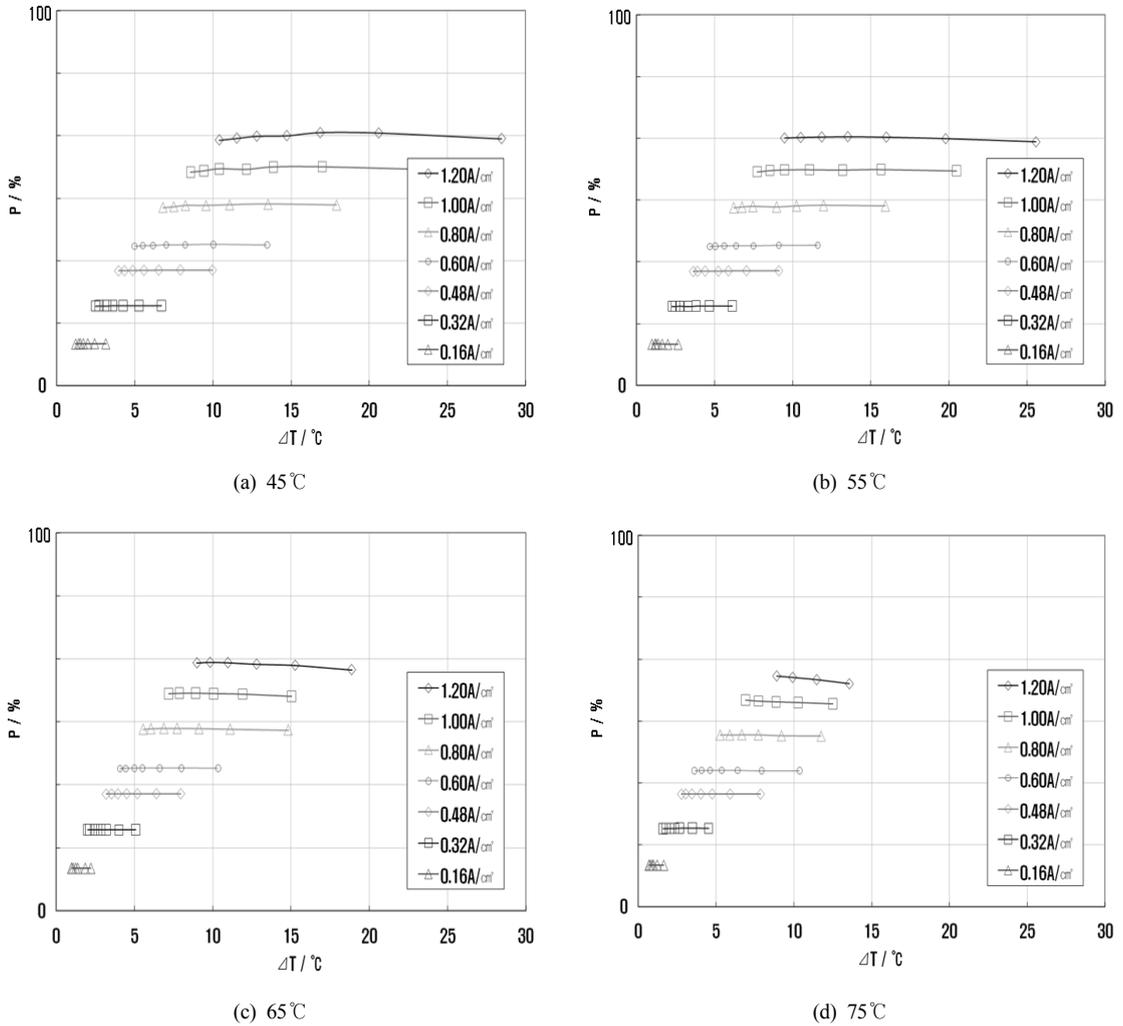


Fig. 3 Stack power performance at the various stack operating temperatures.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 운전 온도별 스택 출력 성능

운전 온도(45~75°C) 및 스택 입·출구 온도차(0~30°C)에 따른 스택 출력 성능 및 냉각수 방열량을 평가하였다. 스택 입·출구 온도차는 냉각수 유량(2.4~7.2LPM) 증가에 따라 점차 감소한다.

Fig. 3 및 Fig. 4는 운전 온도별 전류밀도(0.16~1.20A/cm<sup>2</sup>)에 따른 스택 출력 성능 및 냉각수 방열량 결과이다. 스택 출력 성능은 운전 전류 및 셀 전

압으로부터 식 (1)을 이용하여 계산하였다.

$$P = I \times V \times N \quad (1)$$

냉각수 방열량은 냉각수 공급 유량 및 스택 입·출구 온도차를 이용하여 식 (2)로부터 계산하였다. 이 때 연료전지 스택은 단열 시스템으로 가정하였다. 그리고 운전 온도별 냉각수 밀도는 1.0g/cm<sup>3</sup>, 비열은 4.2J/g/°C로 고정하여 계산하였다.

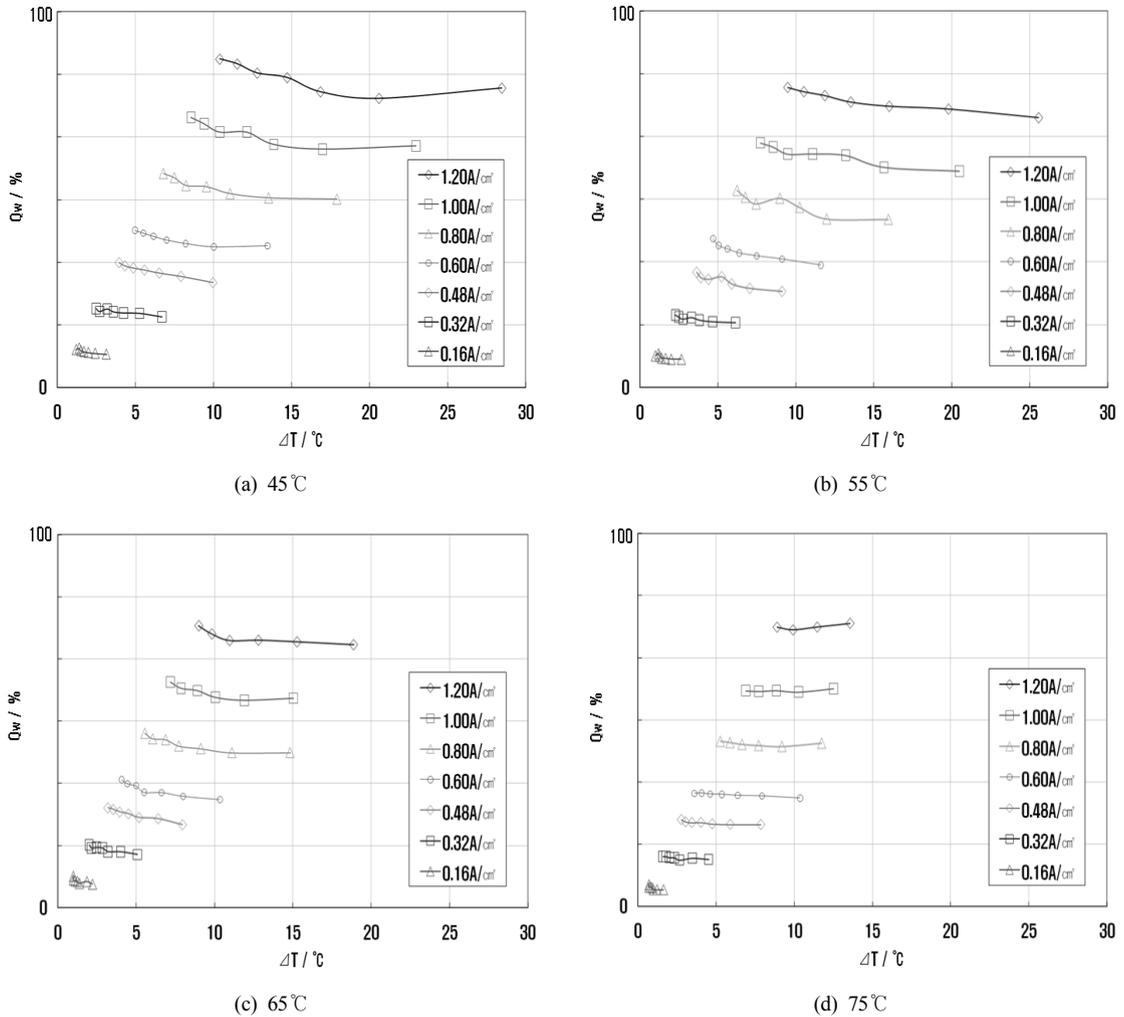


Fig. 4 Coolant radiant heat value at the various stack operating temperatures.

$$Q_w = m \times C_p \times \Delta T \quad (2)$$

평가 결과 운전 온도 및 전류 밀도에 따른 스택 출력 특성 및 운전 가능 영역 도출이 가능하다. 전류 밀도 0.80A/cm<sup>2</sup> 이하 구간에서는 스택 입·출구 온도차에 따른 출력 성능 차이가 크지 않다. 그러나 전류밀도 1.00A/cm<sup>2</sup> 이상, 운전 온도 65°C 이상 구간에서는 스택 입·출구 온도차 증가에 따라 출력 성능이 점차 감소한다. 그리고 운전 온도 75°C, 냉각수 저유량(2.4~4.0LPM) 구간에서는 스택 전압

안정성이 유지되지 않았다. 이는 냉각수 출구측 온도 증가로 멤브레인 및 전극층내 binder의 함수율 감소에 의한 이온 전도도 감소 및 반응 가스 분압 감소에 의한 농도 손실이 그 원인으로 예상된다<sup>2)</sup>.

### 3.2 운전 온도별 스택 발열 특성

스택 발생열은 식 (3)~(4)를 이용하여 계산하는데 연료전지 반응 생성물인 물의 상태에 따라 차이가 있다.

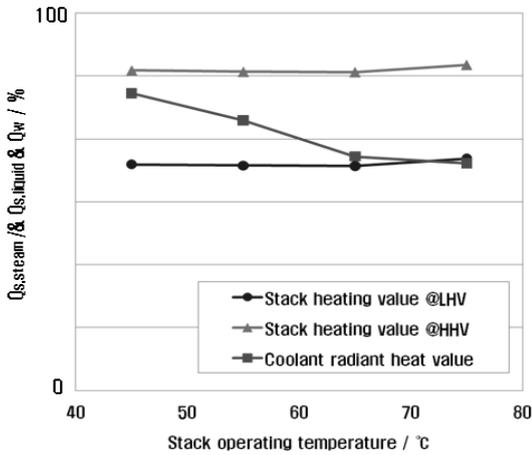


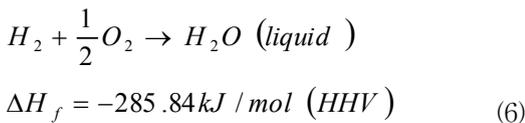
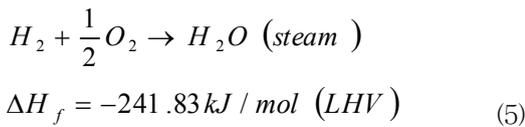
Fig. 5 Stack heating value and coolant radiant heat value @0.60A/cm<sup>2</sup>, 4.8LPM.

$$Q_{s,steam} = (1.25 - V) \times I \times N \quad (3)$$

$$Q_{s,liquid} = (1.48 - V) \times I \times N \quad (4)$$

생성수가 steam인 경우 식 (5)와 같이 25°C, 1atm 조건에서의 생성 엔탈피 값을 갖는다. 이 때 엔트로피 손실이 없는 이상 상태를 고려하여 계산하면 1.25V의 기전력을 갖는다. 스택의 발생열은 이 값을 식 (3)에 대입하여 계산할 수 있다.

생성수가 liquid로 응축된 경우 식 (6)과 같은 엔탈피 값을 가지고 1.48V의 기전력을 갖는다. 그리고 스택의 발생열은 식 (4)를 이용하여 계산할 수 있다.



이때 steam과 liquid 상태의 엔탈피 차이는 44.01

Table 1 Stack heating value and coolant radiant heat value

Stack Operating Temperature	Stack Heating value @LHV	Stack Heating value @HHV	Coolant radiant heat value
45°C	60.0%	84.7%	78.7%
55°C	59.7%	84.3%	71.7%
65°C	59.7%	84.3%	62.0%
75°C	61.3%	86.3%	60.3%

kJ/mol로 물의 상태 변화에 따른 증발 잠열 차이이다. 그리고 생성물이 steam인 경우 낮은 발열량을 가지므로 LHV(lower heating value), liquid인 경우 높은 발열량을 가지므로 HHV(higher heating value)라고 명명한다<sup>1,3)</sup>.

운전 온도별 스택 발열 특성을 분석하기 위해 Fig. 3 및 Fig. 4의 결과를 이용하였다. 평가 결과 중 전류밀도 0.60A/cm<sup>2</sup>, 냉각수 유량 4.8LPM 조건에서 운전 온도별 스택 발생열 및 냉각수 방열량을 Fig. 5 및 Table 1에 나타내었다.

그 결과 스택 운전 온도 45~65°C 구간에서 스택 출력 성능은 1% 이내로 유사하므로 운전 온도별 스택 발생열의 차이는 크지 않다. 그러나 냉각수 방열량은 운전 온도가 감소할수록 15% 이상 증가하는데 이는 연료전지 반응물이 liquid 상태로 점차 많이 생성됨을 예상할 수 있다. 또한 스택 운전온도 75°C에서 스택 발생열 대비 냉각수 방열량이 더 작은 것은 스택 표면에서 외기로 방출되는 열량이 증가하고 반응 후 배출되는 가스에 의해서 열이 일부 제거되기 때문이다.

### 3.3 운전 온도별 스택 내부 물량 측정

운전 온도 감소에 따른 스택 내부 물량 증가 확인을 위해 Fig. 6의 결과와 같이 중성자 방사선 촬영 기법을 이용하여 가시화 하였다. 단, 분리판은 당사에서 개발한 대면적(반응면적 300cm<sup>2</sup> 이상) 혹은 연 분리판을 이용하였으며 MEA와 GDL의 사양은 동일하고 단셀을 이용하여 측정하였다<sup>7,8)</sup>. 중성자 영상 장치 분해능은 200µm로 스택 내부 액적의 크기가 그 이상인 경우에만 분석이 가능하다.

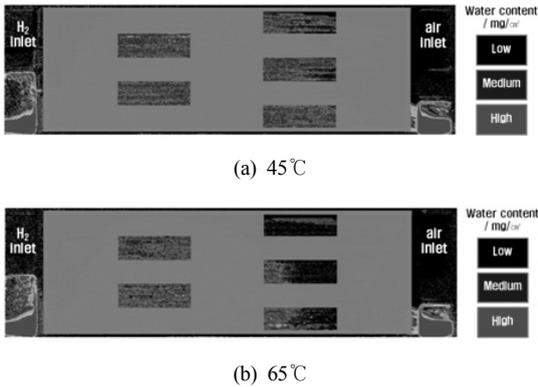


Fig. 6 Neutron visualization @0.32A/cm<sup>2</sup>.

연료전지 스택 운전시 반응물로 생성된 물과 가습수는 셀 내부에 일부 축적되는데 그 양은 분리판 유로 형상 및 멤브레인 함수율, MEA와 GDL 두께, 스택 운전 조건 등에 따라 상이하다<sup>7,8)</sup>. 이에 스택 운전 온도만을 65°C에서 45°C로 감소시킨 경우에 분리판 채널 및 MEA, GDL 내에 축적된 셀 내부 물량(water content)을 측정하여 비교하였다. 축적된 물량 증가로 그 두께가 증가하는 경우 MEA 반응면의 색은 흑색에서 적색으로 점차 변화하게 된다.

평가 결과 Fig. 6과 같이 스택 운전 온도가 65°C에서 45°C로 감소한 경우 셀 내부 물량이 증가하는 것을 확인할 수 있다. 그 양을 정량화한 경우<sup>8)</sup> Table 2의 분석 결과와 같이 200 $\mu$ m 이상의 액적의 양이 2배 이상 증가하는 것을 확인할 수 있다. 이는 Table 1의 결과와 같이 운전 온도 감소시 연료전지 반응물의 liquid 상태 증가로 셀 내부에 축적 가능한 물량이 증가하기 때문으로 예상된다.

### 3.4 연료전지 차량 운전 전략

연료전지 스택의 효율을 향상시키기 위해서는 Fig. 3에서 Fig. 5의 결과와 같이 스택 출력 성능이 높은

Table 2 Water contents @0.32A/cm<sup>2</sup>

Stack Operating Temperature	Water Contents
45°C	228%
65°C	100%

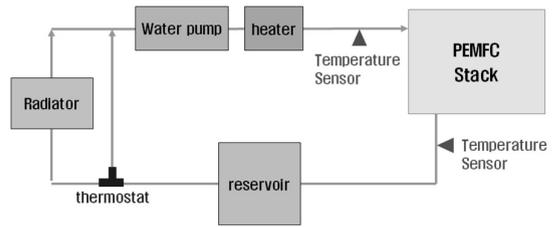


Fig. 7 Diagram of the fuel cell thermal management system.

운전 온도 55°C 부근에서 운전하는 것이 유리하다. 그러나 스택 운전 온도 65°C 조건과 비교하여 스택 발열량이 크게 증가하여 연료전지 차량 냉각 시스템 성능에 불리하다.

또한 차량 냉각에 불리한 낮은 온도에서 운전하는 경우 셀 내부에 액적의 물량 과다로 MEA, GDL 및 분리판 채널내 flooding 가능성을 높인다. 특히 anode측 flooding의 경우 cathode측 산소의 cross-over 증가로 anode측에서 수소/산소 계면이 형성되어 cathode 전극층 카본 담지체 부식을 유발하며<sup>9~12)</sup> anode 전극층내 Pt 입자 주위로 라디칼 발생을 가속화시켜 binder 열화의 원인이 된다<sup>11~14)</sup>. 그리고 수소 확산성 저하로 산화 반응 감소시 수소 이온 생성을 위한 물 전기 분해 반응으로 anode측 카본 담지체 부식을 유발한다<sup>15)</sup>.

따라서 연료전지 차량 운전 온도를 65°C 부근으로 유지하여 스택 발열량을 감소시키고 차량 시동 후에는 짧은 시간 내에 승온 시키는 운전 전략이 유리하다. 또한 이 경우 Fig. 7의 연료전지 차량 냉각 시스템에서 라디에이터의 외기와의 온도차 증가로 방열 성능이 크게 증대되므로 냉각 성능 개선에 매우 유리하다.

현재 운전 온도 승온 시간 단축을 위해 Fig. 7과 같이 차량 냉각수 라인에 히터를 이용하는 기술이 적용되고 있다<sup>16)</sup>. 이 경우 히터의 소모 에너지 만큼 시스템의 효율이 감소하므로 차량 연비에 불리하다. 이에 냉각수 승온 시간 단축을 위해 연료전지 반응물의 증발 잠열을 이용하는 기술 적용이 가능하다.

Fig. 8에 스택 운전온도 45°C, 전류밀도 0.6A/cm<sup>2</sup>

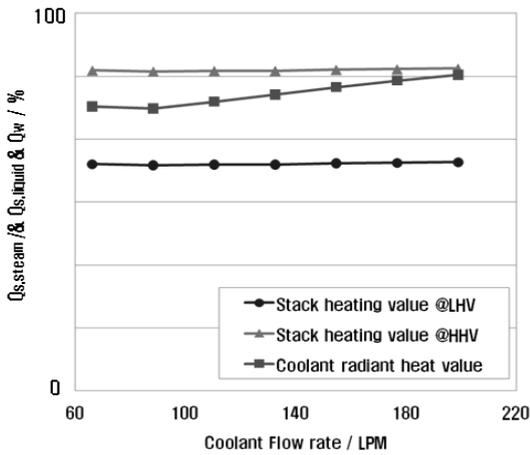


Fig. 8 Stack heating value and coolant radiant heat value @0.60A/cm<sup>2</sup>, 45°C.

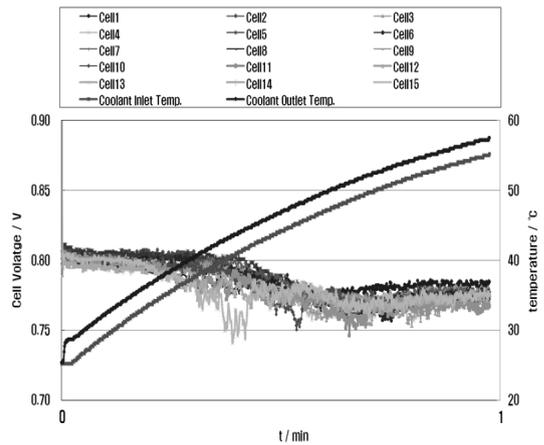
조건에서 냉각수 유량(2.4~7.2LPM)에 따른 스택 발생열 및 냉각수 방열량을 나타내었다. 평가 결과 냉각수 유량 증가에 따라 냉각수 방열량이 점차 증가하는 것을 알 수 있다. 이는 냉각수 채널내 유속이 증가하여 방열에 유리하고 스택 평균 운전 온도 감소로 연료전지 반응물의 상태가 liquid로 존재할 가능성이 크기 때문이다.

이 결과를 이용하여 냉각수 유량 증가에 따른 스택 승온 시간 변화를 평가하였다. 전류밀도 0.16A/cm<sup>2</sup> 조건에서 냉각수 유량을 2.4LPM에서 7.2LPM으로 증가시키고 운전 온도를 25°C에서 55°C까지 승온시켰다. 그 결과 Fig. 9와 같이 냉각수 유량이 3배 증가시 승온 시간이 약 25% 단축되는 것을 확인하였다.

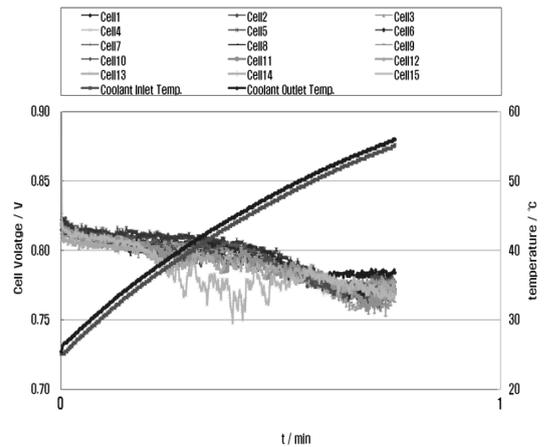
따라서 차량 시동 초기 냉각수 공급 유량을 증가시킬 경우 승온 시간을 단축시킬 수 있고 Fig. 9 결과와 같이 스택 전압 안정성 역시 유지할 수 있다. 단, 승온 시간은 연료전지 차량용 스택 및 냉각 시스템 사양별 열용량 차이에 의해 결정된다.

### 3.5 연료전지 차량 냉각 시스템 사양

연료전지 차량 주행시 다양한 운전 조건과 그에 따른 스택 출력 및 냉각 시스템 방열 성능이 요구된



(a) Coolant flow rate 2.4LPM



(b) Coolant flow rate 7.2LPM

Fig. 9 Voltage stability and coolant operating temperature during start-up @0.16A/cm<sup>2</sup>.

다. 이에 본 실험 결과를 이용할 경우 냉각 시스템 사양 선정 및 스택 운전 조건 선정에 활용할 수 있다.

우선 연료전지 차량에서 요구되는 스택 출력 범위에 따라 연료전지 스택의 셀 수가 선정된다. 그러면 Fig. 3에서 Fig. 4의 스택 출력 및 냉각수 방열량 결과를 이용하여 운전 온도에 따른 스택 운전 가능영역을 도출할 수 있다.

또한 Fig. 10과 같이 스택에서 요구되는 냉각수 방열량 범위에서 필요한 냉각수 유량별 냉각수 입·출구 온도차 범위 도출이 가능하다. 그리고 이 결과

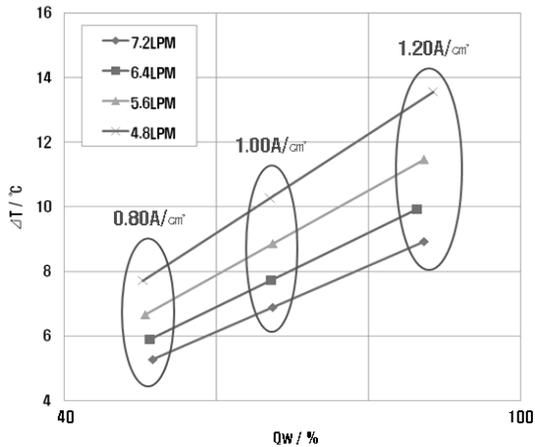


Fig. 10 Temperature difference between coolant inlet and outlet versus the coolant radiation heat value on the coolant flow rate @0.8A/cm<sup>2</sup>, 1.0A/cm<sup>2</sup>, 1.2A/cm<sup>2</sup>, 75 °C.

로부터 Fig. 11과 같이 냉각수 펌프 사양 부족으로 공급 유량이 감소하는 경우 공급 가능한 유량 범위에서 스택에서 예상되는 입·출구 온도차 범위 도출이 가능하다.

마지막으로 연료전지 차량의 겨울철 주행을 위해 부동액을 적용할 경우 Fig. 10에서 Fig. 11의 결과로부터 부동액의 밀도 및 비열 등을 고려하여 Table 3과 같이 부동액 공급 유량 또는 입·출구 온

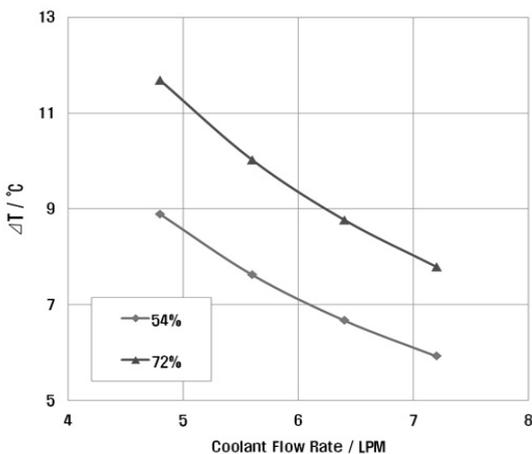


Fig. 11 Temperature difference between coolant inlet and outlet versus on the coolant flow rate @coolant radiant heat value 54% and 72%.

Table 3 Coolant radiant heat value, coolant flow rate and temperature difference between coolant inlet and outlet depending on the coolant species

Coolant	Q <sub>w</sub>	Coolant flow rate	ΔT
Deionized Water*	72%	6.0LPM	9.35 °C
antifreezing solutionA**	72%	6.0LPM	10.52 °C
antifreezing solutionA**	72%	6.8LPM	9.35 °C

\* Density : 1.0g/cm<sup>3</sup>, C<sub>p</sub> : 4.2J/g/°C  
 \*\* Density : 0.9g/cm<sup>3</sup>, C<sub>p</sub> : 3.8J/g/°C

도차를 예측할 수 있다.

#### 4. 결 론

- 1) 스택 운전 온도 및 냉각수 공급 유량을 변화시켜 스택의 출력 성능을 평가하고 스택 운전 가능 영역 및 발열량을 도출하였다.
- 2) 연료전지는 반응물인 물의 액체 또는 기체 상태에 따른 증발 잠열차이 만큼 발열량 차이가 발생한다.
- 3) 운전 온도가 낮을수록 액체 상태의 반응물 생성 증가로 스택 발열량이 증가한다. 그리고 중성자 가시화로 이를 확인하였다.
- 4) 연료전지 차량 상온 시동 시 스택 냉각수 유량을 높여 물의 증발 잠열을 이용한 승온 시간 단축이 가능하다.
- 5) 스택 운전 온도를 65 °C 이상 유지하는 것이 스택 발열량 및 냉각 시스템의 라디에이터 방열 성능에 유리하다.
- 7) 스택에서 요구되는 냉각수 방열량으로부터 냉각수 필요 공급량 및 입·출구 온도차를 유도하여 연료전지 차량 냉각수 펌프 사양 선정에 활용할 수 있다.

#### 후 기

본 연구는 지식경제부 신·재생에너지 기술개발 사업인 “저가형 고효율 스택 양산 설계 기술 개발”

의 일환으로 수행되었습니다.

## 참 고 문 헌

- 1) James Larminie, Andrew Dicks, "Fuel Cell Systems Explained", John Wiley & Sons, Ltd., 2003, pp. 37-59, p. 302.
- 2) 노영우, 김세훈, 정귀성, 손익제, 한국일, 안병기, "운전 조건에 따른 PEM 연료전지 모델링 및 성능 분석", 한국수소 및 신에너지 학회, Vol. 19, No. 3, 2008, pp. 209-216.
- 3) Fuel Cell Handbook Fifth Edition.
- 4) John Nolan, Jason Kolodziej, "Modeling of an automotive fuel cell thermal system", Journal of Power Sources, Vol. 195, 2010, pp. 4743- 4752.
- 5) Yuyao Shan, Song-Yul Choe, Seo-Ho Choi, "Unsteady 2D PEM fuel cell modeling for a stack emphasizing thermal effects", Journal of Power Sources, 165, 2007, pp. 196-209.
- 6) 고재준, 이종현, 김세훈, 안병기, 임태원, "운전조건에 따른 PEMFC 스택 냉시동 특성 연구", 한국수소 및 신에너지 학회, Vol. 20, No. 3, 2009, pp. 224-231.
- 7) 윤종진, 조규택, 이종현, 안병기, "중성자 가시화를 통한 연료전지 분리판 평가", 한국신·재생에너지학회 추계학술대회, 2008, pp. 14-16.
- 8) Kyu Taek Cho, Ahmet Turhan, Jong Hyun Lee, Jack S. Brenizer, Arthur K. Heller, Liang Shi, Matthew M. Mench, "Probing water transport in polymer electrolyte fuel cells with neutron radiography", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 605, 2009, pp. 119-122.
- 9) T. F. Fuller, Gary Gray, "Carbon Corrosion Induced by Partial Hydrogen Coverage", Journal of the Electrochemical Society, Vol. 1, No. 8, 2006, pp. 345-353.
- 10) Hao Tang, Zhigang Qi, Manikandan Ramani, John F. Elter, "PEM fuel cell cathode carbon corrosion due to the formation of air/fuel boundary at the anode", Journal of Power Sources, 158, 2006, pp. 1306-1312.
- 11) JinfengWu, Xiao Zi Yuan, Jonathan J. Martin, Haijiang Wang, JiuJun Zhang, Jun Shen, Shaohong Wu, Walter Merida, "A review of PEM fuel cell durability: Degradation mechanisms and mitigation strategies", Journal of Power Sources, 184, 2008, pp. 104-119.
- 12) Wolfgang Schmittinger, Ardalan Vahidi, "A review of the main parameters influencing long-term performance and durability of PEM fuel cells", Journal of Power Sources, 180, 2008, pp. 1-14.
- 13) 김태희, 이정훈, 조규진, 박권필, "산소 라디칼에 의한 Nafion 막의 열화", 한국화학공학회, Vol. 44, No. 6, 2006, pp. 597-601.
- 14) 김태희, 이정훈, 이호, 임태원, 박권필, "저전류/저가습 조건에서 고분자 전해질 막 열화", 한국수소 및 신에너지학회, Vol. 18, No. 2, 2007, pp. 157-163.
- 15) Shanna D. Knights, Kevin M. Colbow, Jean St-Pierre, David P. Wilkinson, "Aging mechanism and lifetime of PEFC and DMFC", Journal of Power Sources, 127, 2004, pp. 127-134.
- 16) 한수동, 김학구, "연료전지 차량용 COD 겸용 가열장치", 특허 등록번호 KR2009-00210, p. 44.