

## 5 kW 고온 고분자연료전지 스택 수명 극대화를 위한 운전 방법론

김지훈<sup>1,2</sup> · 김민진<sup>2,3†</sup> · 손영준<sup>2,3</sup> · 유상석<sup>1</sup>

<sup>1</sup>충남대학교 기계공학과, <sup>2</sup>한국에너지기술연구원 연료전지연구실, <sup>3</sup>과학기술연합대학원대학교 신에너지 및 시스템 기술

### Operating Method to Maximize Life Time of 5 kW High Temperature Polymer Exchange Membrane Fuel Cell Stack

JIHUN KIM<sup>1,2</sup>, MINJIN KIM<sup>2,3†</sup>, YOUNG-JUN SOHN<sup>2,3</sup>, SANGSEOK YU<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Department of Mechanical Engineering, Chungnam National University

<sup>2</sup>Fuel Cell Research Center, Korea Institute of Energy Research

<sup>3</sup>Department of Advanced Energy and System Technology, University of Science and Technology

**Abstract** >> HT-PEMFC (high temperature polymer electrolyte membrane fuel cell) using PA (phosphoric acid) doped PBI (polybenzimidazole) membrane has been researched for extending the lifetime. However, the existing work on durability of HT-PEMFC focuses on identifying degradation causes of lab scale. The short life time of HT-PEMFC is still the problem for its commercialization. In this paper, an operating method to maximize life time of 5kW HT-PEMFC stack are proposed. The proposed method includes major steps such as minimization of OCV (Open Circuit Voltage) exposure, control of the proper stack temperature, and N<sub>2</sub> purging for the stack. This long life operating method was based on the fragmentary results of degradation from previous research works. Experimentally, the 5 kW homemade HT-PEMFC stack was operated for a long time based on the proposed method and the stack successfully can operate within the desired degradation rate for the target life time.

**Key words** : HT-PEMFC(고온 고분자 연료전지), Durability(내구성), Operating condition(운전조건), OCV(개방 회로전압), Phosphoric Acid(인산), Degradation (열화)

## 1. 서 론

연료전지는 고효율, 친환경, 높은 출력밀도 등과 같은 장점을 가지고 있어 유망한 미래 청정 에너지 기술로 많은 관심을 받고 있다<sup>1,2)</sup>.

LT-PEMFC (low temperature polymer electrolyte membrane fuel cell)가 상용화에 어려움을 겪고 있는 원인은 여러 가지가 있다.

LT-PEMFC를 운전하기 위해서는 가습기, 수분 트랩 등과 같은 물 관리 시스템이 필요하다. 또한 특정 불순물의 농도가 낮은 수소를 연료로 사용해야하며 연료전지 운전을 통해 얻을 수 있는 배열온도가 낮아 활용이 제한적이다. 이러한 문제를 해결하기 위한 대안으로 HT-PEMFC (high temperature polymer electrolyte membrane fuel cell)의 연구가 활발히 진행 되고 있다. 인산이 도핑된 PBI기반의 MEA (membrane electrode assembly)를 사용하는 HT-PEMFC는 별도의 가습 없이 운전이 가능하다. 연료전지 운전을 통해 발생하는 물이 증기 형태로 존재하기 때문에 기존 물 관리의

<sup>†</sup>Corresponding author : minjin@kier.re.kr

Received : 2016.1.26 in revised form : 2016.3.15 Accepted : 2016.4.30

Copyright © 2016 KHNES

어려움이 쉽게 해소된다.

HT-PEMFC는 120~180°C 이상 운전 온도에서 일산화탄소의 피독으로 인한 MEA 성능저하 현상이 현저히 감소하여 일산화탄소 농도 3%까지 내성을 가지게 된다. 따라서 일산화탄소 제거공정을 최소화하여 연료개질 비용을 절감 할 수 있다.

또한 100°C에 가까운 높은 배열온도를 얻을 수 있기 때문에 열에너지를 다양한 목적으로 사용할 수 있다<sup>3)</sup>.

하지만 HT-PEMFC는 여전히 지속적인 기술 개발이 필요하다. HT-PEMFC는 이론적으로 높은 전기화학 반응 속도를 갖으나 실제 개발된 HT-MEA의 성능은 LT-MEA의 성능에 미치지 못하는 실정이다. 또한 인산누출 및 고온의 가혹한 운전 조건으로 인해 내구성이 취약하며 수명이 짧은 단점이 있다.

HT-PEMFC에 관한 기존의 연구는 내구성 및 수명 극대화에 관한 연구보다는 모델링을 통한 열화 분석<sup>5,6)</sup>, 운전 온도에 의한 열화<sup>7,8)</sup>, 촉매 층의 열화<sup>9)</sup>, 고전압에 의한 열화<sup>10)</sup>, 인산 누출에 의한 열화<sup>11)</sup> 등 열화 원인 규명에 치중하여 일부 단편적인 운전 조건에 대한 연구가 진행되었으며, 단위전지 내구성 평가<sup>4,10)</sup>, 연료 조성에 따른 DSS (Daily Start-up Shutdown) 성능평가<sup>12)</sup>, 장기운전 성능 평가<sup>13)</sup>, 온도 분포<sup>14-16)</sup> 등 연구의 대상은 주로 단위전지 또는 서브 스택으로 이루어졌다<sup>17)</sup>.

본 연구에서는 HT-PEMFC의 내구성을 극대화하기 위해 그동안 수행되었던 HT-PEMFC의 열화 원인 연구를 기반으로 HT-PEMFC 내구성 및 성능열화를 가속시키는 운전 조건에 대한 노출을 최소화하는 내구성 극대화 운전 알고리즘을 수립하였다. 또한 내구성 극대화 운전 알고리즘을 통한 내구성 향상 여부를 실증하기 위해 5 kW 스택을 제작하여 장기 운전 내구성실험을 실시하였다.

## 2. 수명극대화를 위한 운전 최적화

### 2.1 HT-PEMFC 열화 원인

#### 2.1.1 High-voltage 노출(높은 전압 운전)

연료전지의 OCV (Open Circuit Voltage)는 연료 및 산화물을 공급한 후 출력이 없는 상태이며, 연료전지에서 발생할 수 있는 가장 높은 전압을 형성한다. 고온 고전압의 인산수용액에서 백금촉매 응집 실험 결과 약 0.7V 이상의 고전압에서는 전압이 증가할수록 백금 촉매 응집 속도가 급격히 증가하였다<sup>18,19)</sup>. 백금 촉매의 응집현상이 활발해지면 연료전지의 전기화학 반응면적이 감소되어 연료전지의 수명 및 내구성이 감소된다. 즉, 셀 전압 0.9V~0.95V 이상의 고전압을 형성하는 OCV는 셀의 내구성 및 수명을 감소시키는 치명적인 원인이 된다. 이런 백금촉매 응집 현상은 연료극보다 공기극에서 활발하게 발생한다. 응집된 백금 입자는 스스로 회복되지 않기 때문에 영구적인 열화이다<sup>10)</sup>. 정상적인 연료전지 운전 중에는 운전 조건에 따라 고전압노출을 방지 할 수 있지만 시동과정에서 연료 공급 및 ESD (Emergency Shutdown) 상황에서는 자연스럽게 고전압에 노출된다.

#### 2.1.2 인산 누출

HT-PEMFC에서 인산은 수소이온을 이동시키는 필수 요소이다. 따라서 HT-MEA에서 인산이 결핍된 공간은 수소이온 이동 매개체로서의 역할을 수행하지 못하게 되며 결과적으로 HT-PEMFC의 성능감소로 이어진다.

인산은 조해성이 높은 물질로써 대기 중의 수분과 반응하여 쉽게 수용액이 되는 성질을 가지고 있다. 이런 성질 때문에 Cathode site에서 생성되는 수분은 HT-MEA 내부의 인산 누출을 가속 시키는 원인이 된다<sup>11)</sup>.

### 2.1.3 높은 온도 운전

HT-PEMFC의 높은 운전 온도는 셀의 반응성을 향상시켜 성능을 증가시키는 장점이 있지만 셀의 수명을 감소시키는 원인이 된다.

Fig. 1에서는 HT-PEMFC 운전 온도와 내구성의 관계를 나타내었다. 운전온도가 높을수록 셀의 성능은 증가하지만 내구성은 감소하게 된다. 하지만 운전 온도의 증가에 따른 성능 증가와 내구성의 감소는 비례하지 않으며, 온도가 높아질수록 증가하는 성능 대비 내구성 및 수명의 감소는 급격하게 발생한다.

스택 수준의 운전에서는 스택내부의 균일한 열관리가 필요하다. 스택 운전에서는 운전 중 발생하는 열과 냉각오일 유동 및 열전달현상으로 인해 스택 내부 온도편차가 발생하게 된다. 스택의 균일한 열관리가 이루어지지 않으면 목표 운전 온도 보다 높은 온도에서 스택이 운전되는 상황이 발생하며 MEA 열화를 가속시키는 원인이 된다.

## 2.2 열화 방지용 운전 전략 수립

### 2.2.1 고전압 방지 운전

HT-PEMFC 시동 시 목표 운전 온도까지 승온 하지 않고 목표 운전 온도보다 낮은 온도에서 부분 부하 운전을 실시하여 연료가 공급 될 때 발생하는 고온-고전압에 의한 MEA손상을 최소화한다. 운전을 종료할 때는 스택 내부에 남아있는 연료에 의한 고전압을 방지하기 위해 스택 내부 퍼지를 실시한 후 운전을 종료한다.

운전 중 발생하는 ESD 및 연료전지 시동과정에서 발생하는 셀의 고전압을 방지하기 위해 저항 장치를 설치하였다. 저항 장치는 셀의 전압이 일정 전압 이상 증가하면 저항을 발생시켜 셀을 일정 전압 이하로 유지시키는 역할을 한다.

따라서 HT-PEMFC는 시동/정지 과정 및 정격운전에서 항상 스택 내부 셀의 전압은 일정 전압 이하

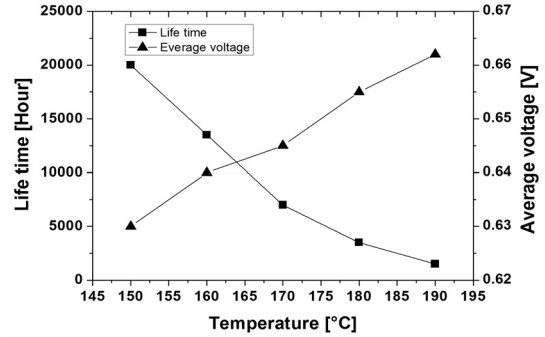


Fig. 1 Model-simulated lifetime and average voltage according to operating temperature

로 유지되어 운전하였다.

### 2.2.2 인산 누출 방지 운전 조건

수분에 의해 연료전지 MEA의 인산이 누출이 가속화되는 것을 방지하기 위해 스택으로 공급되는 연료 및 공기는 무가습 조건으로 공급하여 운전을 실시하였다. HT-PEMFC 스택 운전을 종료 할 때는 운전 중 발생한 스택 내부 물을 증기상태로 제거하기 위해 공기극 공기 퍼지, 연료극 질소 퍼지를 충분히 실시한 후 스택의 연료극 및 공기극을 밀폐하였다.

### 2.2.3 열화 방지 운전 온도 제어

운전 온도에 의한 스택열화를 최소화하기 위해서는 HT-PEMFC의 운전 온도와 수명의 관계를 고려하여 목표 운전시간과 목표 성능에 맞는 적절한 운전 온도를 선정하였다.

Fig. 2에서는 스택의 열관리를 위해 냉각판으로 공급 및 배출되는 냉각오일의 방향을 나타내고 있다. 스택 내부 온도는 실시간 측정이 가능하며 온도 변화를 민감하게 나타내는 부분을 측정해야한다. 본 실험에서는 냉각판에서 냉각오일이 공급되는 부분 및 배출되는 부분의 온도를 측정하였다. 측정된 냉각판의 온도를 고려하여 냉각오일의 온도 및 유량 조절을 통해 스택을 목표 온도에 맞게 열 관리를 실시하

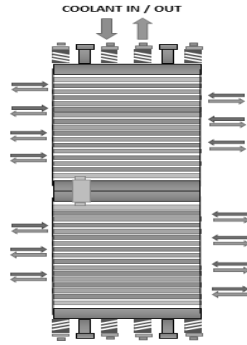


Fig. 2 Coolant oil supply for heat management of 5k HT-PEMFC stack

여 국부적으로 불균일한 열 분포현상을 방지하며, 전체 스택의 온도편차를 최소화하였다.

### 2.3 고온고분자연료전지 수명극대화 운전 알고리즘

2.3절에서는 HT-PEMFC 스택의 내구성 및 수명극대화를 위해 HT-PEMFC의 열화를 가속시키는 원인들에 대한 노출을 최소화하는 시동 및 정지 알고리즘을 나타내었다. Table 1에서는 알고리즘에 사용된 기호에 관한 설명을 나타내고 있다.

Table 1 Specifications of HT-PEMFC stack operating algorithm

Description	Parameter	Value
Temperature	$T_1$	10°C
	$T_2$	50°C
	$T_3$	100°C
	$T_4$	120°C
	$T_5$	140°C
	$T_{Cool}$	Coolant temperature
	$T_{end\_plate}$	End plate temperature
Flow rate	$F_{Part}$	Required to partial load
	$F_{Rated}$	Required to rated load
	$F_{Purge}$	Required to purge
	$F_{Min}$	Minimum flow
	$F_{Max}$	Maximum flow
	$F_0$	Zero flow
	$F_{Cool}$	Coolant flow rate
Stack power	$P_{min}$	Stack minimum power
	$P_{stack}$	Stack power
	$P_{part}$	Stack partial power
	$P_{rated}$	Stack rated power
Other Symbols	$P_0$	Open circuit voltage
	$V_{cell}$	Cell voltage
	$V_{stack}$	Stack voltage
	$P_{Cool}$	Coolant pressure

#### 2.3.1 Start up

Fig. 3에서는 HT-PEMFC의 내구성 극대화를 위한 시동 알고리즘을 나타내고 있다.

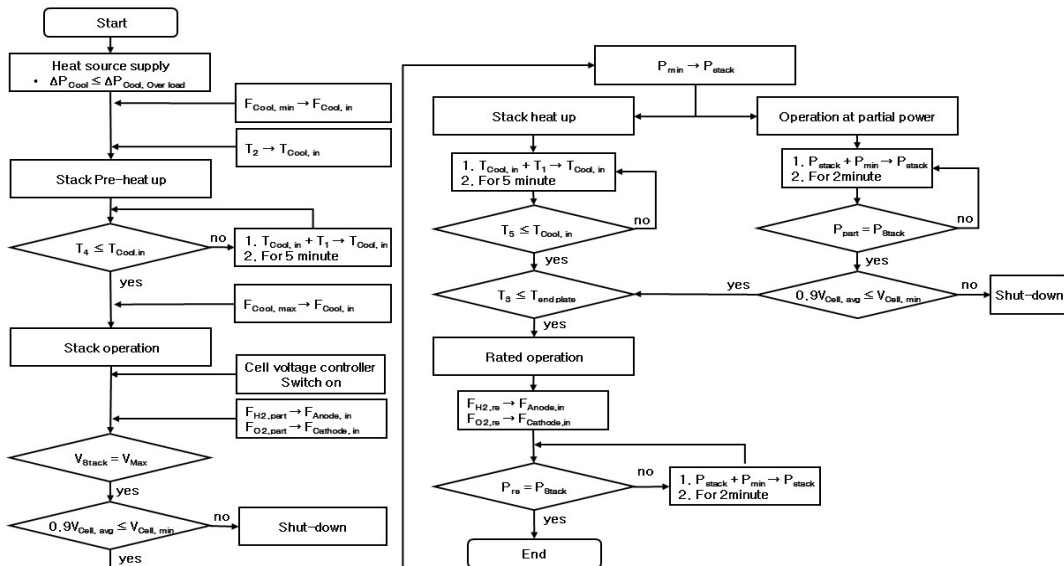


Fig. 3 Start-up algorithm of the HT-PEMFC stack for long life operation

### STEP 1 Heat source supply

HT-PEMFC는 운전 온도가 100°C 이상에서 이루어지기 때문에 물을 냉각수로 사용하기 용이하지 않다. 따라서 냉각오일을 통한 스택의 열관리가 이루어진다. 운전 초기 낮은 온도에서는 오일의 점성이 매우 크기 때문에 높은 유량으로 냉각오일을 공급할 경우 오일펌프는 과부하에 노출된다. 따라서 운전 초기에는 오일펌프의 부하관리를 위해 최소유량으로 오일공급을 시작한다. 운전초기 냉각오일은 외부 히터로부터 열을 공급받아 스택에 열을 공급하는 열원의 역할을 하게 된다.

### STEP 2 Pre-heat up

스택의 승온 속도가 너무 빠르면 소재의 급격한 열팽창에 의한 물리적 파손을 유발할 수 있기 때문에 목표 운전 온도의 70~80%까지 일정한 속도로 승온을 실시한다. 냉각오일은 약 2~3°C/min 속도로 천천히 승온하며, 냉각오일의 온도가 증가함에 따라 냉각오일의 점도는 점점 낮아져 오일펌프의 부하는 점점 감소하게 된다. 따라서 냉각오일의 공급 유량은 오일펌프의 과부하범위를 넘지 않는 수준에서 온도 증가에 따라 적절하게 증가시킨다.

### STEP 3 Operation at partial power

목표 온도의 70~80% 온도에서 부분 부하 운전을 실시한다. 부분 부하 운전과정에서 발생하는 열을 이용하여 스택 승온 시간을 단축시킨다. 운전을 위해 공급되는 연료에 의해 발생하는 고전압을 방지하기 위해 저항 장치를 작동시킨 후 부분 부하 운전부하에 맞는 유량의 연료를 공급한다. 이후 각 셀의 성능테스트를 실시한다. 각 셀의 성능 확인 후 부적절한 성능을 나타내는 셀이 발생하면 Shut-down 절차를 통하여 스택 운전을 종료하며, 성능에 문제가 발생하지 않을 경우 최소부하부터 스택 운전을 실시한다. 스택의 최소부하운전 시작과 동시에 Pre heat-up의 승온

조건과 동일하게 냉각오일의 온도를 목표운전 온도까지 증가시킨다. 냉각오일의 승온과 함께 스택의 부하를 최소부하( $P_{min}$ )에서 부분부하( $P_{part}$ )까지 약 2분 간격으로 천천히 부하를 증가시킨다. 스택의 부하가 부분부하까지 증가하면 각 셀의 성능테스트를 실시한다. 셀의 성능을 확인한 후 스택의 End plate 온도가 약 100°C에 도달할 때까지 계속해서 부분 부하 운전을 실시한다. 적층수가 많은 스택에서는 열전달 현상으로 인해 End plate부근에 위치한 셀의 온도가 스택 중심에 위치한 셀의 온도보다 상대적으로 승온속도가 느리기 때문에 온도 편차가 발생한다. 따라서 온도편차에 의한 스택의 성능분포 불균일을 최소화하기 위해 스택의 온도 편차를 최소화 한 후 스택의 정격운전을 실시한다.

### STEP 4 Rated operation

스택부하를 정격부하까지 증가시키기 위해 부분 부하운전을 위해 공급되고 있는 연료의 유량을 정격 부하에 맞게 증가하여 공급한다. 이후 부분 부하에서 정격부하까지 천천히 부하를 증가시켜 정격 부하 운전을 시작한다.

#### 2.3.2 Shut down

Fig. 4에서는 HT-PEMFC의 내구성 극대화를 위한 정지 알고리즘을 나타내고 있다.

### STEP 1 Operation at partial power

스택의 운전을 종료하기 위해 정격운전중인 스택의 부하를 정격부하에서 부분부하로 감소시킨다. 정격 부하에서 부분 부하로의 부하 감소는 약 2분 간격으로 천천히 실시하며 감소된 부하만큼 연료량도 감소시킨다. 부분부하운전으로 전환함에 따라 스택의 발열량도 줄어들기 때문에 이를 고려하여 냉각오일 온도를 조절해야한다.

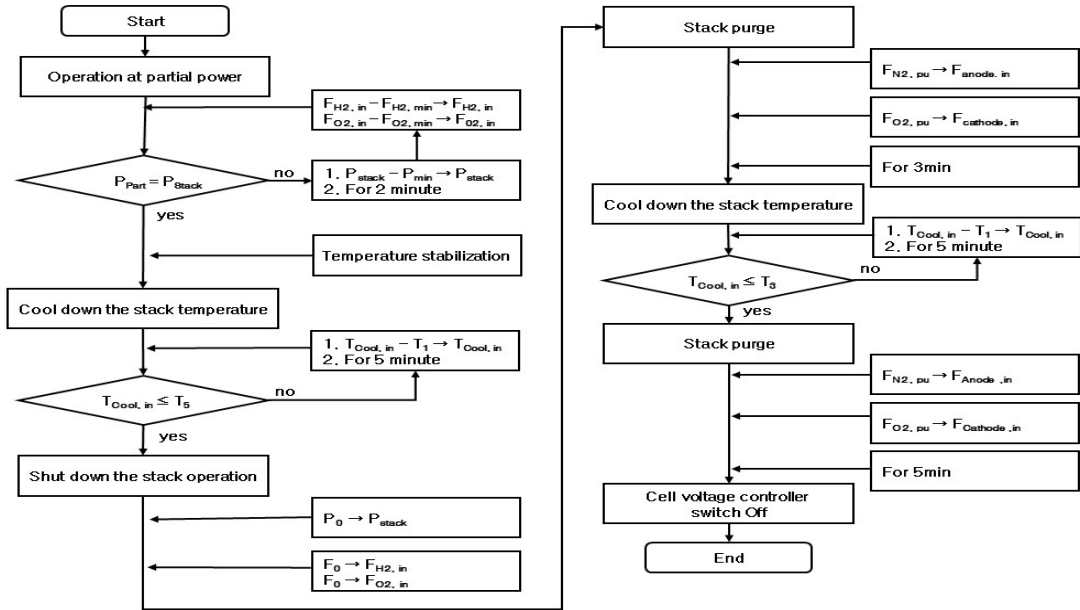


Fig. 4 Shut-down algorithm of the HT-PEMFC stack for long life operation

**STEP 2 Cool down**

스택 발열량에 의한 온도 변화가 안정화되면 부분 부하 운전을 실시하면서 목표 운전 온도의 70~80% 까지 강제 냉각을 실시한다. 승온 과정과 마찬가지로 급격한 온도변화에 의한 스택의 물리적 손상을 방지하기 위해 냉각요일은 약 2~3°C/min의 속도로 천천히 냉각시킨다.

**STEP 3 Load off and purge**

스택의 1차 냉각이 완료되면 부분 부하 운전 또한 종료한다. 스택의 부하는 OCV상태가 되며 부하가 완전히 제거되면 수소 및 산소의 공급을 중단한다.

운전 종료 후 스택 내부 연료극 및 공기극에 응축되어 남아있는 수분제거 및 연료에 의한 고전압 방지를 위해 퍼지를 실시한다. 이때 공급되는 기체의 압력에 의한 MEA손상을 방지하기 위해 애노드 및 캐소드로 공급되는 기체의 공급 압력은 동일하게 공급한다. 1차 purge는 약 3분간 진행되며 공급되는 질소 및 공기의 유량은 일정하게 유지한다.

**STEP 4 Cool down**

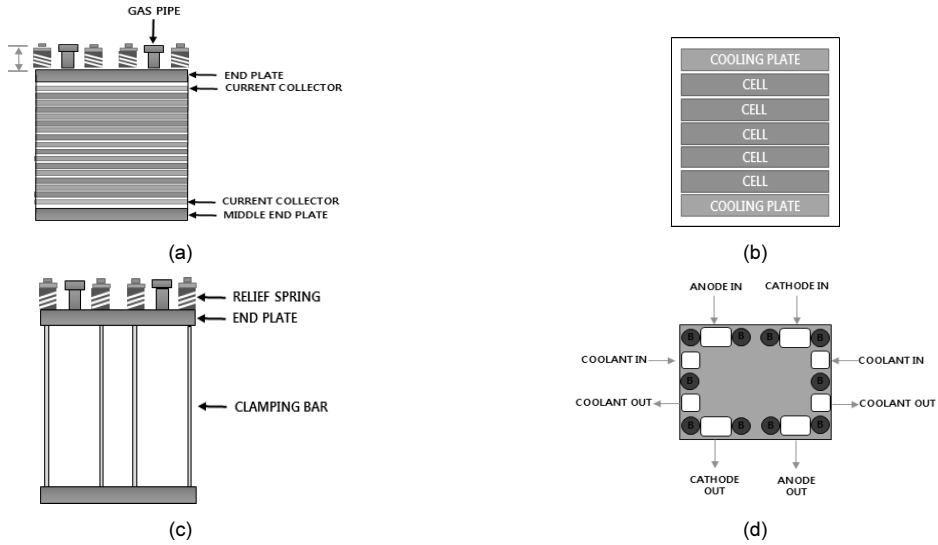
스택의 온도를 목표 운전 온도의 약 50%수준으로 천천히 2차 냉각을 실시한 뒤 STEP 3에 나타난 것과 동일하게 2차 purge과정을 약 5분간 실시한다. 각 셀의 OCV가 약 0.5 V미만으로 유지하면 각 셀에 설치된 저항 장치를 종료한다. 스택 운전 종료 후 스택은 공기와의 접촉을 차단 한 뒤 밀폐하여 상온에서 자연냉각을 실시한다.

**3. 실험**

**3.1 스택 구성**

Fig. 5에서는 장기 운전 내구성 실험을 위해 제작한 2.5 kW 스택 구조를 나타내고 있다. Fig. 5-(a)에서는 완성된 2.5 kW HT-PEMFC 스택을 나타내고 있다. 5 kW HT-PEMFC 스택은 Fig. 5-(a)에 나타난 2.5 kW 스택을 상하로 결합하여 제작하였다.

스택의 적절한 열관리를 위해 Fig. 5-(b)처럼 5장의



**Fig. 5** The structure of the HT-PEMFC stack : (a) Schematic of half stack (b) Cooling structure of HT-PEMFC stack for stable thermal management (c) Combination structure of relief spring for HT-PEMFC stack (d) Shape of end plate for gas and coolant flow

MEA당 1장의 냉각판을 삽입하였다. MEA의 일정한 압력 분포를 위해 Fig. 5-(c)와 같이 체결봉과 스프링을 사용하여 체결하였다. 체결되는 스프링의 길이에 따라 스택에 가해지는 압력이 달라지기 때문에 스프링의 길이는 Leak와 스택 성능을 고려하여 선정하였다.

Fig. 5-(d)는 스택 내부로 공급되는 연료 및 냉각오일의 유로를 나타내고 있다.

Fig. 6은 저항 장치를 설치하여 운전 중인 실제 스택을 나타내고 있다.

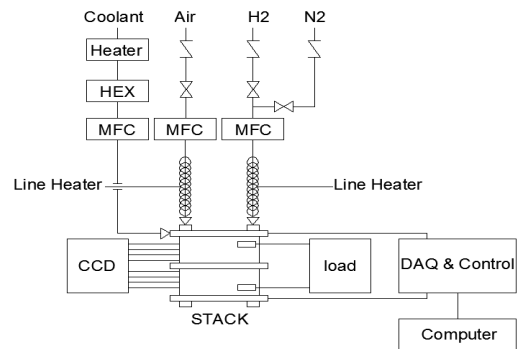


**Fig. 6** 5 kW HT-PEMFC stack operation for long term durability test with cell voltage control device

### 3.2 실험 준비

실험에 사용된 스테이션은 G사의 G-400모델이며 모식도는 Fig. 7과 같다. 스택의 온도분포 측정은 NI-USB-TC01장치와 NI-Labview프로그램을 사용하여 측정하였다. 스택의 고전압 방지를 위해 저항 장치(Cell voltage Control Device, CCD)를 설치하였다.

스택 운전을 위해 필요한 모든 BOP (balance of plant)는 G-400 Station을 통해 제어하였다.



**Fig. 7** Schematic diagram of test station for long term durability test and MEA activation

**Table 2** Operating conditions of HT-PEMFC stack

Operating mode	Fluid	Stoichiometry (Supply gas)	Temperature (Stack)
Activation	Hydrogen	1.25	155°C
	Air	2	
Long term operation	Simulated fuel (H <sub>2</sub> : N <sub>2</sub> )	1.25 (8 : 2)	
	Air	2	

스택제작에 사용된 MEA는 PBI-H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>기반으로 제작된 약 300 cm<sup>2</sup> 대면적 HT-MEA가 사용되었다. 흑연 분리판은 Serpentine 형식으로 제작되었으며 분리판에 부착되어있는 선 가스켓을 통해 연료 Leak를 최소화 하였다.

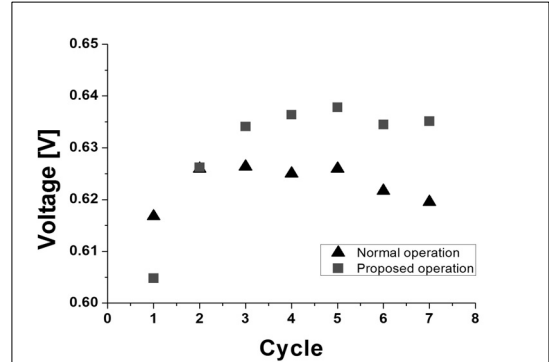
스택의 체결 및 MEA에 가해지는 압력을 적절하게 유지하기 위해 분리판과 분리판 사이 및 분리판과 냉각판 사이에는 Hard-type의 Gasket을 사용하였다. Table 2에서는 HT-PEMFC의 활성화 및 장기운전에 적용된 연료의 특성을 나타내고 있다. 장기운전의 경우 LNG를 개질하여 연료로 사용하는 운전 조건을 모사하기 위해 개질모사가스를 사용하였으며 안전한 실험을 위해 수소 및 질소만을 사용하였다.

### 3.3 실험 결과

#### 3.3.1 MEA 활성화

Fig. 8의 그래프는 HT-MEA Activation 결과를 나타내고 있다. 내구성 극대화 운전 알고리즘을 적용한 스택은 MEA활성화 과정을 통해 셀 평균 성능이 0.605 V에서 0.635 V까지 약 0.03 V 증가하였다. 하지만 일반적인 운전 조건에서는 MEA활성화를 통해 약 0.617 V에서 0.62 V로 약 0.003 V 증가하였으며 성능 변화는 크게 나타나지 않았다. 결과적으로 내구성 극대화 운전 알고리즘 적용 결과 MEA의 성능은 일반적인 운전 조건에 비해 셀 당 약 0.015 V가 높은 성능을 나타내었다.

MEA활성화 과정에서는 일반 운전 조건 및 내구



**Fig. 8** Variations of cell performance according to operating conditions during the activation cycle

성 극대화 운전 조건을 적용한 스택 모두 ESD는 발생하지 않았다. 그러나 내구성 극대화 운전 조건과는 다르게 일반 운전 조건의 스택은 시동과정 및 운전 종료 후 다음 운전 사이클 까지 OCV에 의한 고전압에 노출되었다. 결과적으로 OCV노출 초기 셀의 성능이 급격히 증가한 후 서서히 성능 감소가 발생한 일반 운전 조건의 셀의 경우 Zhigang Qi<sup>10)</sup>의 실험결과와 마찬가지로 OCV에 의해 형성되는 고전압의 영향으로 성능열화 현상이 발생하였으며, 내구성 극대화 운전 조건을 적용한 스택에서는 OCV에 의해 형성된 고전압의 영향을 받지 않아 성능 열화 현상 없이 셀을 활성화 할 수 있었다.

#### 3.3.2 장기운전

Fig. 9에 나타낸 그래프는 MEA활성화를 마친 스택의 장기 운전 결과를 나타내었다. 1000시간 장기 운전 실험을 하는 동안 일반 운전 방법과 내구성 극대화 운전 방법 모두 여러 차례 ESD이 발생하였다. 운전 정지된 스택은 각각 운전방법에 따른 시동과정을 거쳐 정상상태에 도달한 후에 계속해서 실험을 진행하였다. ESD상황이 발생할 때마다 스택은 정지 및 시동 과정을 반복하게 된다. HT-PEMFC의 정지 및 시동과정은 HT-PEMFC 냉각 및 승온 과정을 반복하는 것으로 시동 및 정지과정동안 스택 내부는



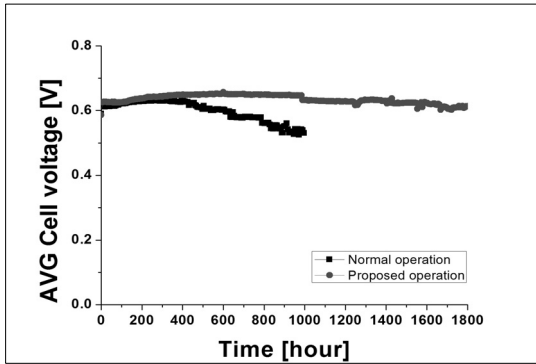


Fig. 9 Validations of cell performance during the long term durability test. The stack was operated at  $0.2 \text{ A/cm}^2$

상온에서 약  $160^\circ\text{C}$ 사이의 온도변화를 반복하게 된다. 결과적으로 MEA내부에 위치한 전해질은 온도변화의 영향으로 부피변화에 의한 응력이 발생하게 되며 성능 열화의 원인이 된다<sup>10)</sup>. 1000시간 장기운전 후 운전조건에 따른 성능차이를 비교하면 내구성 극대화 운전알고리즘을 적용한 스택은 셀 평균  $0.632 \text{ V}$ , 내구성 극대화 운전 알고리즘을 적용하지 않은 스택은 평균  $0.541 \text{ V}$ 을 나타냈다. 장기 운전 실험 결과 내구성 극대화 알고리즘을 적용한 스택의 셀 당 평균 성능이  $0.091 \text{ V}$  높은 것으로 나타났다. 일반 운전 조건을 적용한 스택의 500시간 운전 후 셀 당 평균 성능은  $0.615 \text{ V}$ 로 내구성 극대화 운전 알고리즘을 적용한 스택의 1650시간 운전 후 셀 당 평균 성능  $0.617 \text{ V}$ 와 비슷한 수준으로 나타났다.

### 3.3.3 비정상 운전 정지(ESD)에 의한 성능감소 비교

Fig. 10에서는 비정상 운전 정지 상황이 발생 하였을 때 내구성 극대화 운전조건 적용에 따른 스택의 셀 당 성능 감소를 나타내고 있다. 비정상 운전 정지 상황이 발생하였을 때 일반 운전 조건에서는 셀 당 최소  $5 \text{ mV}$ 에서 최대  $18 \text{ mV}$ 의 성능감소가 발생하였지만, 내구성 극대화 운전조건에서는 셀 당 최소  $0.5 \text{ mV}$ ~최대  $6.5 \text{ mV}$ 의 성능감소가 발생하였다. 내구성 극대화 운전 조건을 적용하지 않은 스택은 비정상

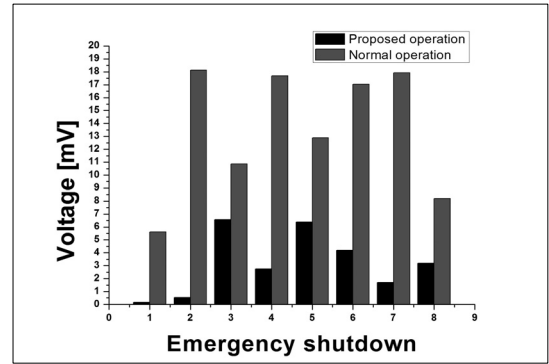


Fig. 10 Performance decrease of voltage per cell by emergency shutdown

운전 정지 상황으로 인한 운전 정지 후에 다시 운전을 시작 할 때까지 자연스럽게 OCV에 의한 고전압 상태에 노출된다.

따라서 고전압 노출에 의한 지속적인 성능열화가 발생하였다. 하지만 내구성 극대화 운전 조건의 스택에서는 비정상 운전 정지 상황이 발생함과 동시에 저항 장치가 작동하여 고전압에 대한 노출을 방지하였다. 비정상 운전 정지 상황에서 각 셀의 전압을  $0.7 \text{ V}$  이하로 유지하는 운전조건에서도 셀의 성능 열화는 발생하였다. 하지만 OCV에 의한 고전압에 지속적으로 노출되었던 일반 운전 조건의 스택과 비교하면 고전압 노출에 의한 성능 열화는 크게 감소한 것을 알 수 있다. ESD가 발생하는 상황은 HT-PEMFC의 정지 및 시동과정을 반복해야하는 열화 원인이기 때문에 ESD발생을 최소화해야 한다.

## 4. 결 론

본 연구에서는 HT-PEMFC 성능열화를 가속시키는 운전 조건에 대한 노출을 최소화하는 운전방법을 적용한 스택 실험을 통해 다음과 같은 결과를 얻었다.

첫째, MEA활성화 결과를 통해 OCV에 노출된 HT-PEMFC의 성능은 노출 초기 급격히 증가하지만 이후에는 지속적으로 감소하는 것으로 나타났다. 따

라서 HT-PEMFC의 내구성 극대화를 위해서는 운전 초기부터 OCV에 대한 노출을 최소화하는 운전 조건이 필요하다. 둘째, HT-PEMFC 스택의 장기 운전 내구성 실험 결과 열화원인에 대한 노출을 최소화하는 내구성 극대화 운전 알고리즘을 통해 스택의 내구성은 약 1,000시간 이상 향상되었다. 셋째, ESD에 따른 HT-PEMFC 스택 성능 감소량 비교 결과 내구성 극대화 운전 알고리즘의 적용을 통해 ESD에 의해 발생하는 성능감소량을 최대1/10에서 최소1/3수준으로 감소시킬 수 있었다.

## 후 기

본 연구는 산업통상자원부(민군기술협력진흥센터)의 지원으로 이루어진 민군협력사업(13-DU-SP-01-MKE) 및 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제(No. 20133010031751)의 일환으로 수행되었습니다.

## References

1. Jianlu Zhang, Zhong Xie, Jiujun Zhang, Yanghua Tang, Chaojie Song, Titichai Navessin, Zhiqing Shi, Datong Song, Haijiang Wang, David P. Wilkinson, Zhong-Sheng Liu, Steven Holdcroft "High temperature PEM fuel cells", *Journal of Power Sources* 160 (2006) 872-891.
2. Na-Eun Lee-Wook-Won Kim-Jin-O Kim, "Optimal Configuration Algorithm for ESS with Renewable Energy Resources Considering Peak-shaving Effects", *The Transactions of the Korean Institute of Electrical Engineers* Vol. 63, No. 9, (2014) pp. 1199-1205.
3. Amrit Chandan, Mariska Hattenberger, Ahmad El-kharouf, Shangfeng Du, Aman Dhir, Valerie Self, Bruno G. Pollet, Andrew Ingrama, Waldemar Bujalski, "High temperature (HT) polymer electrolyte membrane fuel cells (PEMFC) e A review", *Journal of Power Sources* 231 (2013) 264-278.
4. Jianlu Zhang, Zhong Xie, Jiujun Zhang, Yanghua Tang, Chaojie Song, Titichai Navessin a, Zhiqing Shi, Datong Song, Haijiang Wang, David P. Wilkinson a,b, Zhong-Sheng Liu a, Steven Holdcroft, "High temperature PEM fuel cells", *Journal of Power Sources* 160 (2006) 872-891.
5. Taegon Kang, Minjin Kim, Jintae Kim, Young-Jun Sohn "Numerical modeling of the degradation rate for membrane electrode assemblies in high temperature proton exchange membrane fuel cells and analyzing operational effects of the degradation", *international journal of hydrogen energy* 40(2015) 5444-5455.
6. Minjin Kim, Taegon Kang, Jintae Kim, Young-Jun Sohn, "One-dimensional modeling and analysis for performance degradation of high temperature proton exchange membrane fuel cell using PA doped PBI membrane", *Solid State Ionics* 262 (2014) 319-323.
7. Yuka Oono, Takashi Fukuda, Atsuo Sounai, Michio Hori, "Influence of operating temperature on cell performance and endurance of high temperature proton exchange membrane fuel cells", *Journal of Power Sources* 195 (2010) 1007-1014.
8. Jintae Kim, Minjin Kim, Taegon Kang, Young-Jun Sohn, Taewon Song, Kyoung Hwan Choi, "Degradation modeling and operational optimization for improving the lifetime of high-temperature PEM (proton exchange membrane)fuel cells", *Energy* 66 (2014) 41-49.
9. A.S. Arico, A. Stassi, E. Modica, R. Ornelas, I. Gatto, E. Passalacqua, V. Antonucci, "Performance and degradation of high temperature polymer electrolyte fuel cell catalysts", *Journal of Power Sources* 178 (2008) 525-536.
10. ang Qi, Steve Buelte, "Effect of open circuit voltage on performance and degradation of high temperature PBI-H3PO4 fuel cells", *Journal of Power Sources* 161 (2006) 1126-1132.
11. Yuka Oono, Atsuo Sounai, Michio Hori, "Influence

- of the phosphoric acid-doping level in a poly-benzimidazole membrane on the cell performance of high-temperature proton exchange membrane fuel cells”, *Journal of Power Sources* 189 (2009) 943-949.
12. Jintae Kim, Minjin Kim, Bong-Gu Lee, Young-Jun Sohn, “Durability of high temperature polymer electrolyte membrane fuel cells in daily based start/stop operation mode using reformed gas”, *international journal of hydrogen energy* (2015) 1-8.
  13. Yuka Oono, Atsuo Sounai, Michio Hori, “Long-term cell degradation mechanism in high-temperature proton exchange membrane fuel cells”, *Journal of Power Sources* 210 (2012) 366-373.
  14. J.-P. Maes, S. Lievens, Methods for fuel cell coolant systems, U.S. Patent 7,201,982, assigned to Texaco, Inc, 2007.
  15. N. Djilali, D.M. Lu, Influence of heat transfer on gas and water transport in fuel cells, *Int. J. Therm. Sci.* 41 (2002) 29-40.
  16. M. Imaseki, T. Ushio, Y. Shimoyama, Cooling method for fuel cell, US Patent 7,070,873, assigned to Honda Giken Kogyo Kabushiki Kaisha, 2006.
  17. P. Bujlo, S. Pasupathi, Ulleberg, J. Scholta, M.V. Nomnqa, A. Rabiou, B.G. Pollet, “Validation of an externally oil-cooled 1 kWel HT-PEMFC stack operating at various experimental conditions”, *international journal of hydrogen energy* 38 (2013) 9847-9855.
  18. Perminder Bindra, Sidney J. Clouser and Ernest Yeager, “Platinum Dissolution in Concentrated Phosphoric Acid”, *JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY*.
  19. by Mark F. Mathias, Rohit Makharia, Hubert A. Gasteiger, Jason J. Conley, Timothy J. Fuller, Craig J. Gittleman, Shyam S. Kocha, Daniel P. Miller, Corky K. Mittelsteadt, Tao Xie, Susan G. Yan, Paul T. Yu, “Two Fuel Cell Cars In Every Garage”, *The Electrochemical Society Interface* Fall 2005.