

고분자 전해질 연료전지 멀티 스택 시스템의 수소극 흐름방향에 따른 습도분포 및 성능변화

Humidity Distribution and Performance Variation of a PEMFC Multi Stack System According to the Direction of Anodic Supply

이용택(Yongtaek Lee)[†]

한남대학교 기계공학과

Department of Mechanical Engineering, Hannam University, Daejeon, 34430, Korea

(Received December 13, 2017; revision received February 1, 2018; Accepted: February 3, 2018)

Abstract In this study the performance and humidity variation for 2 unit cells connected in series were experimentally measured. The relative flow direction of hydrogen and air was changed from parallel flow to counter flow. Internal humidity distribution was then measured by 5 embedded sensors on each channel. In all experimental conditions, the former unit cell showed a better performance and the gap is noted to be higher when counter flow is applied. The performance was noted to be higher at high humidification case in the parallel flow. However, in the counter flow, the difference of performance according to the humidification is negligible. Hydrogen and air are discharged from the PEMFC unsaturated with water vapor at parallel flow/low humidification condition, which explains lower performance of the PEMFC than other conditions. The humidities in hydrogen and air streams of counter flow were noted to increase rapidly even at low humidification condition and the consequential even hydration of membrane is the reason of higher performance.

Key words PEMFC(고분자 전해질 연료전지), Humidity distribution(습도분포), Parallel flow(평행류), Counter flow(대향류)

[†] Corresponding author, E-mail: neotrin@hnu.kr

1. 연구배경 및 목적

최근 기존의 내연기관에 의존한 자동차에서 벗어나 전기모터를 이용하여 동력을 얻는 전기자동차에 대한 관심이 점차 증가하고 있으며, 일부 상용모델이 출시되어 도로를 달리고 있다. 전기를 동력원으로 하는 자동차에 대한 수요가 증가함에 따라 배터리를 이용한 전기자동차와 더불어 긴 충전시간이 필요 없는 수소연료전지 자동차의 시장 확대도 기대된다. 자동차에 적용되는 연료전지는 고분자 전해질 연료전지(proton exchange membrane fuel cell, PEMFC)로서 빠른 응답성과 상대적으로 낮은 운전온도로 인한 빠른 시동의 장점이 있다. 다만 내부 화학반응의 결과물로 생성되는 물의 기화점보다 낮은 운전온도로 인하여 연료전지의 내부에 존재하는 물의 이동 및 분포에 따라서 성능이 크게 좌우되는 특성이 있고, 그로 인하여 많은 연구들이 PEMFC 내부의 물의 이동현상과 관련하여 진행되어 왔다.

PEMFC의 전해질막은 수화도에 따라 이온전도도가 매우 크게 변화하며 성능에 직접적인 영향을 주기 때문에 공급하는 수소와 공기에 가습을 한 상태로 공급한다. 그럼에도 공급가스의 입구 근처의 전해질막은 수화도가 떨어지는 반면 출구 근처로 갈수록 내부에서 생성된 물의 이동에 의하여 오히려 플러딩(flooding) 현상이 발생하여 성능 저하의 원인이 된다. 수소극과 공기극은 기체가 투과하지 않는 전해질막으로 분할되어 있으나

물의 이동은 가능하며 양측간의 물의 농도가 완화되는 방향으로 물의 확산(diffusion)이 발생한다. 이로 인하여 PEMFC에 공급되는 수소와 공기의 채널의 형상과 공급 방향에 의하여 평행류(parallel flow), 대향류(counter flow), 그리고 직교류(cross flow) 등으로 구분할 수 있으며 수소와 공기의 흐름의 방향에 따른 영향을 전산 해석을 통해 제시하기도 하였다.^(1, 2)

PEMFC 내부에 존재하는 물이 성능 및 신뢰성에 미치는 영향이 매우 크기 때문에 물의 분포를 알아내기 위한 연구가 다양하게 진행되었다. PEMFC의 외부를 투명하게 제작하여 플러딩을 가시화하는 방법을 사용하기도 하였고,⁽³⁻⁶⁾ 중성자 조영법(neutron imaging)을 이용하여 내부에 존재하는 액체 상태의 물의 분포를 측정하기도 하였다.^(7, 8) 그러나 이러한 결과들은 물의 상대적인 많고 적음을 정성적으로 측정하는 데 머물렀고, 특히나 응축되지 않는 수증기 상태의 습도분포는 알 수 없는 방법이었다. 최근 초소형 습도 센서를 채널 내부에 삽입하여 운전상태에서 채널 내의 습도 분포를 정량적으로 측정하는 방법이 도입되었다.⁽⁹⁾ 또한 전산해석을 통하여 PEMFC 내부의 물의 공급, 발생, 그리고 이동현상을 예측하는 연구도 진행되었다.⁽¹⁰⁾

본 연구에서는 초소형 습도 센서가 내장된 2개의 멀티 단위전지 PEMFC로 이루어진 시스템을 제작하고 평가 하였다. 수소와 공기의 흐름은 2개의 단위전지 사이에서 직렬로 연결하며 각 셀의 전기적 회로는 독립시킴으로써 두 단위전지에서 생산되는 전력을 별도로 측정하고 이로 인한 성능변화를 측정할 수 있도록 하였다. PEMFC의 용량을 증가시키기 위해서 현재까지 사용되는 방법은 여러 장의 단위전지를 스택으로 적층하여 사용하며 전기적으로는 직렬로 연결되고, 가스의 공급에 있어서는 주로 병렬의 형태를 나타낸다. 따라서 가스의 흐름에 따른 전단부와 후단부 단위전지의 특성이 구별되지 못하였다. 본 연구에서는 독립적으로 부하 조절이 가능한 멀티 단위전지 PEMFC에 대하여 외부 가습조건을 다양하게 변경시키는 가운데 수소와 공기의 흐름을 평행류와 대향류로 변화시키고 그 흐름에 의한 각 단위전지의 습도분포 및 성능변화를 실험적으로 측정하였다.

2. 실험장치 및 방법

본 연구에서는 2장의 PEMFC 단위전지를 직렬로 연결하여 사용하였다. 각 단위전지는 50 cm²의 유효면적을 가지며 폭과 깊이가 각각 1 mm×1 mm인 이중사형채널을 사용하였다. 수소극과 공기극의 채널은 서로 대칭으로 설계되어 입구와 출구의 위치부터 각 흐름이 서로 마주볼 수 있도록 설계하였다. 각 채널에는 Fig. 1과 같이 5개의 온습도센서가 장착되어있고, 2개의 단위전지에서 총 20곳의 습도데이터를 실시간으로 수집하였다. 온습도센서는 Fig. 2와 같이 엔드플레이트와 분리판을 관통하여 장착되며 실리콘과 에폭시를 이용하여 누설이 없도록 밀봉하였다. 센서에 액적이 부착되면 오작동 및 내구성의 손실이 발생할 수 있으므로 센서의 표면을 발수성을 가지는 얇은 테프론 시트로 코팅하여 수증기는 투과하되 액적은 부착되지 않도록 하였다. 센서에서 발생하는 디지털신호를 자체 제작한 모니터링 시스템으로 실시간 관찰 및 저장이 가능하도록 하였다.

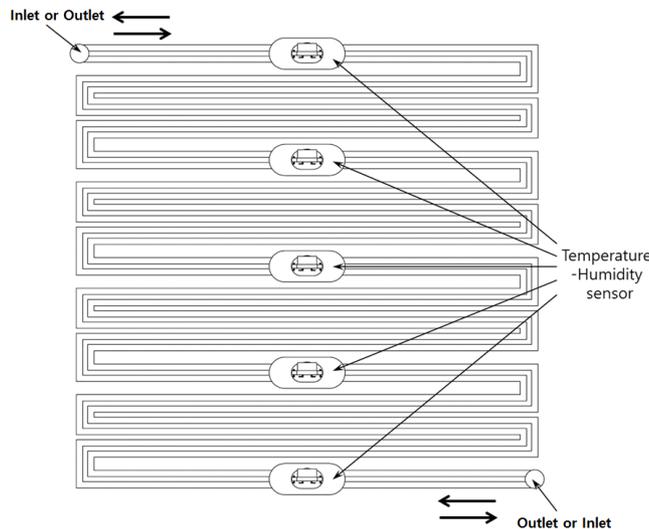


Fig. 1 Flow-field design employed in the experiment. Humidity sensors are located at five points on a flow.

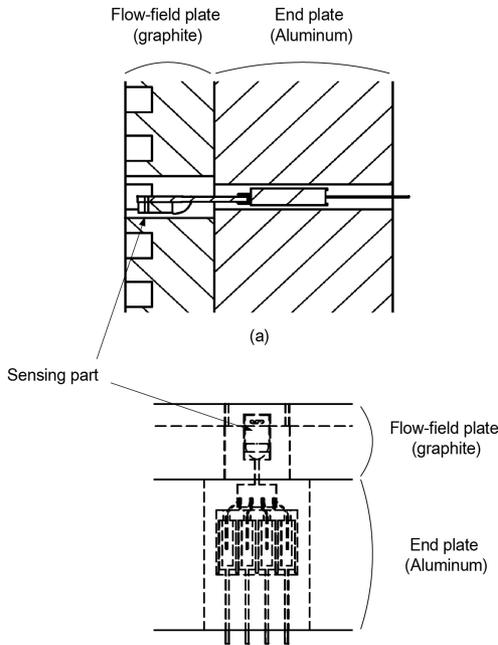


Fig. 2 Cross-section of the installed sensor from (a) side view and (b) frontal view.

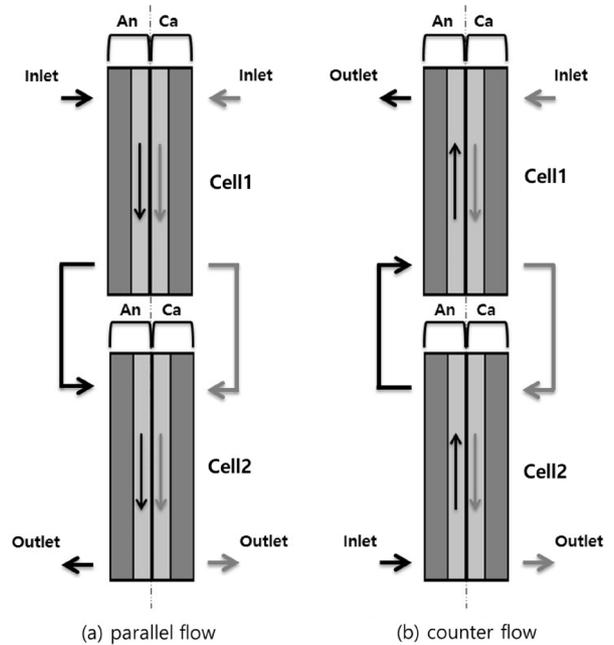


Fig. 3 Connection of dual PEMFC unit cells and the fuel supply direction of (a) parallel flow and (b) counter flow.

단위전지에 사용된 MEA는 Nafion 211을 전해질막으로 사용하고 양면에 백금 0.4 mg/cm²가 로딩된 촉매층이 도포되었다. GDL은 미세다공층(microporous layer)이 있는 Sigracet®의 GDL 10BC를 사용하였다. 각 단위전지는 정전류방식으로 운전되며 수소극과 공기극의 Stoichiometry는 각각 1.2와 2로 유지하였다. PEMFC에 공급하는 공기는 버블형 가습기를 이용하여 외부 가습 되었으며 가습의 정도는 가습기의 물의 온도를 50℃와 70℃로 변경하여 조절하였다. 각 경우 연료전지 입구에서의 상대습도는 각각 39.5%와 100%로 환산된다. 가습된 공기가 연료전지로 공급되기 이전에 응축되는 것을 방지하기 위하여 배관 및 연료전지는 모두 동일하게 70℃로 유지하였다. 수소는 가습되지 않은 건조상태로 수소극으로 공급되며 Fig. 3과 같이 공기의 흐름방향은 고정된 상태로 수소의 흐름방향을 바꾸어 평행류와 대향류를 실현하였다.

본 실험에 사용된 채널 내장형 온습도센서의 정확도는 동일한 습도 측정장치를 사용한 기존의 문헌⁽⁹⁾에서 이미 검증하였다. 외부가습장치를 다양한 온도로 설정하고 동일한 온도의 단열포화장치를 통과한 질소에 대한 이론식의 결과와 비교하였으며 그 결과 가습기의 온도가 65℃보다 작은 영역에서는 질소에 대한 습도비와 상대습도에 관한 이론예측치와 실측치의 일치도가 매우 컸으며 그 이상의 영역에서 편차가 다소 증가함을 보였다.

3. 결과 및 토의

Fig. 4는 2개의 단위전지의 분극곡선을 수소의 공급방향 및 외부가습량에 따라서 각각 나타내었다. 공기의 흐름방향을 기준으로 앞에 위치한 단위전지를 C1, 뒤에 위치한 단위전지를 C2로 명명하여 표기하였다. 수소 및 공기는 직렬로 연결되어 공기는 항상 C1에서 배출된 상태 그대로 C2로 공급되고, 수소는 평행류에서는 C1로부터 C2의 방향으로, 대향류에서는 C2로부터 C1의 방향으로 흐른다. 우선 평행류에 있어서 저가습조건($T_{hum} = 50^\circ\text{C}$)에서는 C1과 C2가 큰 차이를 보이지 않으나 전류밀도가 높아짐에 따라 후단에 위치한 C2의 성능이 다소 증가함을 알 수 있다. 공기극에서 생성된 물이 공기의 흐름을 따라 후단부로 이동하면서 전해질막의 수화도가 증가하기 때문인 것으로 유추할 수 있다. 그러나 고가습조건($T_{hum} = 70^\circ\text{C}$)에서는 C2의 성능이 C1보다 낮게 나타나며 과도한 양의 물로 인한 플러딩 현상으로 인한 것으로 판단된다.

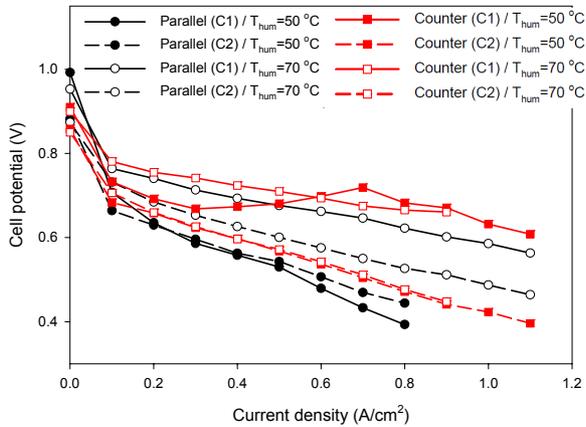


Fig. 4 Polarization curves of each unit PEMFC according to the direction of the gas supply and external humidification.

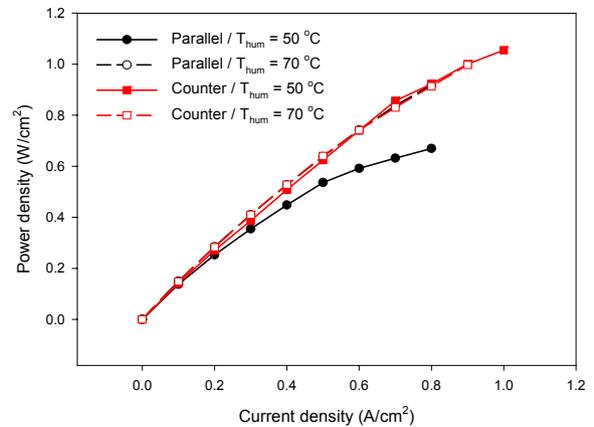


Fig. 5 Total power density curves of dual PEMFC according to the direction of the gas supply and external humidification.

대향류에서는 저가습조건에서 C1의 성능변화 특성이 두드러진다. 전류의 증가, 즉 부하의 증가에 따라서 전압이 감소하는 일반적인 경향에서 벗어나 전류밀도가 0.3 A/cm² 이후에서 오히려 증가하는 현상을 보인다. 대향류이므로 공기극의 출구 근처에는 충분한 물의 농도를 가진 공기와 건조한 수소가 전해질막을 사이에 두고 만나며, 높은 물 농도 차이로 인한 활발한 물의 확산으로 인하여 수소측이 흐름 초기부터 충분히 수화되었기 때문인 것으로 판단된다. 외부가습의 정도가 이미 충분한 70°C 조건에서는 그러한 현상이 나타나지 않는 것으로도 설명이 가능하다.

Fig. 5는 각 조건에 대하여 C1과 C2의 두 개의 단위전지에서 얻어지는 전력밀도를 나타낸다. 평행류에서 Fig. 4와 동일하게 고가습조건에서의 성능이 향상되었다. 다만 대향류에서는 가습의 양의 증가에 따라서 두 단위전지의 총합 성능은 크게 차이가 없으며 평행류의 고가습조건에서의 결과와 거의 동일한 것으로 나타났다.

Fig. 4와 Fig. 5의 성능의 변화로부터 유추하였던 각 조건에서의 수소극과 공기극의 전단과 후단의 습도분포 예측을 직접 측정된 습도 데이터를 바탕으로 살펴보고자 한다. Fig. 6은 수소극에서 측정된 습도분포를 나타낸다. 단위전지의 번호는 앞에서 언급한대로 공기의 흐름을 기준으로 부여되며, 공기는 항상 C1의 1-1에서 1-5를 거쳐 C2의 2-1에서 2-5의 방향으로 흐른다. 수소는 평행류에서는 공기와 동일한 방향으로 흐르며, 대향류에서는 2-5로 유입되어 1-1로 배출되는 흐름을 가진다. 평행류에서 첫 번째 센서위치에서는 T_{hum} = 50°C와 T_{hum} = 70°C 조건에서 모두 매우 낮은 습도를 나타낸다. 다만 공기극의 가습이 충분한 70°C 조건에서 입구부터 첫 번째 센서 사이의 간격에서 일부 수분이 수소극으로 유입된 것을 알 수 있다. 채널을 따라 흐르며 수소극의 습도가 점차 증가하는데 수소극에서는 물의 발생이 일어나지 않으므로 증가하는 물은 모두 공기극으로부터 확산되어 넘어 오는 것으로 볼 수 있다. 고가습조건에서는 이미 첫 번째 단위전지의 후단에서 수소극의 습도가 100%로 포화되었다. 대향류에서 역시 건조한 수소는 유입 즉시 가습되기 시작하나 대향류에서는 그 기울기가 평행류와 비교하여 매우 급한 것으로 나타난다. 전해질막 반대편의 공기극의 물의 농도가 그만큼 크다는 것을 의미하며 이로 인한 공기극 후단의 플러딩 감소와 전체적인 수화도 증가가 평행류 대비 높은 성능의 원인이 됨을 알 수 있다. 이와 같이 포화상태에 이른 수소는 채널의 후반부(1-1)에서 다시 감소하게 되는데 이는 상대적으로 물의 농도가 낮은 공기극의 상태 때문에 전기삼투현상(electro-osmosis)에 의하여 수소이온과 함께 공기극으로 넘어가는 물의 양이 공기극으로부터의 역확산보다 많기 때문이다.

Fig. 7은 공기극 채널에 위치한 센서에서 측정된 결과를 나타낸 것이다. 고가습조건에서는 평행류와 대향류 모두 공기의 습도가 거의 포화상태를 나타낸다. 주목할 점은 센서 2-5에서 평행류는 포화상태로 배출되는데 비해 대향류의 습도가 80%RH로 감소되는데, 이는 전해질막의 반대쪽에 매우 건조한 수소가 공급되어 수소극으로 활발한 물의 확산이 일어나는 대향류의 특징이다. 저가습조건에서는 PEMFC에 유입된 후 물의 발생으로 인한 습도의 증가가 나타난다. 평행류보다 대향류에서 습도의 증가 속도가 더 빠르며 이는 대향류에서 공기극의 말단으로부터 충분하게 가습되어 이동해 오는 수소로 인하여 수소극으로의 확산 정도가 약하기 때문이다.

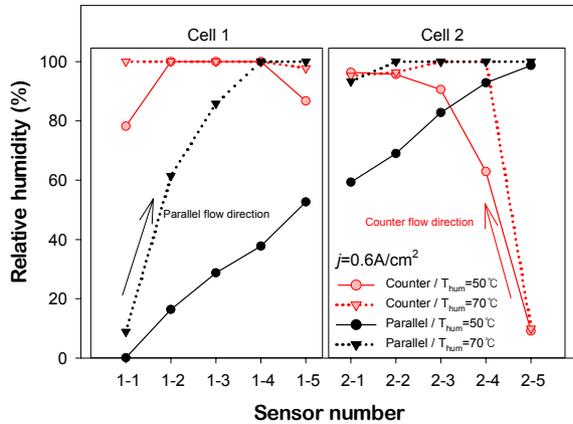


Fig. 6 Variation of relative humidity at the anode through the channel of dual PEMFCs.

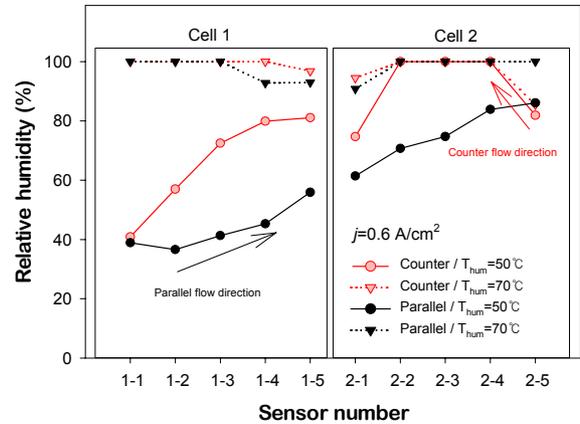


Fig. 7 Variation of relative humidity at the cathode through the channel of dual PEMFCs.

또한 저가습조건에서도 대향류의 말단에서 발행하는 습도의 감소는 동일하게 관찰되었다. 공기극과 수소극의 전반적인 습도 분포로부터 대향류는 평행류에 비하여 전해질막의 수화도가 높으며 C2가 C1보다 높은 습도를 나타냄을 알 수 있다. 이는 수소의 공급방향에 따라서 또한 두 연료전지의 위치에 따라서 성능이 차이가 나타나는 이유를 설명한다.

4. 결 론

본 연구는 PEMFC의 내부 습도분포 및 성능변화를 실험적으로 측정하는 것을 목적으로 한다. PEMFC를 지나는 수소 및 공기는 급격한 습도변화를 일으키며 그 흐름방향에 따라 다른 성능특성을 나타낸다. 본 연구에서는 PEMFC 단위전지 2장을 연결하고 수소극과 공기극의 흐름을 평행류와 대향류로 변경하며 각 단위전지의 성능 및 습도분포를 측정하였다. 가스공급은 직렬로 연결하고 전기적으로는 분리하여 각 단위전지의 성능을 별도로 측정할 수 있게 하였다. 내부의 습도 분포는 각 단위전지의 수소극과 공기극 채널 내부에 내장된 각각 5개의 센서를 이용하여 측정하였다.

모든 조건에서 전단의 단위전지가 높은 성능을 보이며 대향류에서는 그 차이가 더욱 두드러졌다. 평행류는 고가습조건에서 두 전지의 총합성능이 높게 나타났으나 대향류에서는 저가습 혹은 고가습조건에서 거의 동일한 총합성능이 관찰되었다. 평행류/저가습 조건에서 공기 및 수소는 미처 포화되지 못한 채로 배출되며 이는 다른 조건에 비하여 낮은 성능을 보이는 원인이 된다. 대향류는 저가습조건에서도 공기 및 수소흐름 내의 습도가 가파르게 상승하며 전해질막이 전반적으로 고르게 수화되어 높은 성능을 나타낼 수 있음을 확인할 수 있다.

후 기

이 논문은 2017학년도 한남대학교 학술연구조성비에 의하여 연구되었으며 이에 감사드립니다.

References

1. Kwac, L. K. and Kim, H. G., 2008, Investigation of gas flow characteristics in proton exchange membrane fuel cell, Journal of Mechanical Engineering and Technology, Vol. 22, pp. 1561-1567.
2. Ryu, E. H. and Kim, W. T., 2013, Performance analysis of PEMFC depending on the flow direction of reactant gas in cathode gas channel, Journal of Korean Society of Mechanical Technology, Vol. 15, pp. 97-102.
3. Liu, X., Guo, H., and Ma, C., 2006, Water flooding and two-phase flow in cathode channels of proton exchange

- membrane fuel cells, *Journal of Power Sources*, Vol. 156, pp. 267-280.
4. Tuber, K., Pocza, D., and Hebling, C., 2003, Visualization of water buildup in the cathode of a transparent PEM fuel cell, *Journal of Power Sources*, Vol. 124, pp. 403-414.
 5. Lee, Y., Kim, B., and Kim, Y., 2009, An experimental study on water transport through the membrane of a PEFC operating in the dead-end mode, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 34, pp. 7768-7779.
 6. Lee, D. and Bae, J., 2012, Visualization of flooding in a single cell and stacks by using a newly-designed transparent PEMFC, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 37, pp. 422-435.
 7. Park, J., Li, X., Tran, D., Abdel-Basel, T., Hussey, D. S., Jacobson, D. L., and Arif, M., 2008, Neutron imaging investigation of liquid water distribution in and the performance of a PEM fuel cell, *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 33, pp. 3373-3384.
 8. Ludlow, D. J., Calebrese, C. M., Yu, S. H., Dannehy, C. S., Jacobson D. L., Hussey, D. S., Arif, M., Jensen M. K., and Eisman G. A., 2006, PEM fuel cell membrane hydration measurement by neutron imaging, *Journal of Power Sources*, Vol. 162, pp. 271-278.
 9. Lee, Y. and Yang, G. Y., 2015, Measurement of humidity distribution in a proton exchange membrane fuel cell using channel embedded humidity sensors, *Transaction of Korean Society of Mechanical Engineering B*, Vol. 5, pp. 397-403.
 10. Gorgun, H., Arcak M., and Barbir F., 2006, An algorithm for estimation of membrane water content in PEM fuel cells, *Journal of Power Sources*, Vol. 157, pp. 389-394.