

한국에너지공학회(1999년도)
춘계 학술발표회 논문집 P233~238

5kW급 고분자 연료전지 스택 및 운전 시스템의 개발

전영갑*, 김창수, 백동현, 신동렬
한국에너지기술연구소, 연료전지연구팀

Fabrication of 5kW Polymer Electrolyte Fuel Cell Stack and Operating System

Y.-G. Chun*, C.-S. Kim, D.-H. Peck, D.R. Shin
Korea Institute of Energy Research, Fuel Cell Research Team

1. 서론

고분자 연료전지 (polymer electrolyte membrane fuel cell (PEMFC)) 시스템은 연료전지 스택, 연료공급부, 공기공급부, 냉각부, 운전 제어부, 전자부하 및 데이터 획득부 그리고 인버터 등으로 구성된다. 이 가운데 가장 중요한 구성요소인 고분자 연료전지 스택의 성능은 전극과 전해질막 접합체의 성능뿐만 아니라 스택의 구조와 유로형상에도 크게 의존한다. 따라서 보다 고성능의 전해질막과 전극을 개발하고 소형화, 경량화가 가능한 스택의 구조와 유로형상을 찾는 것이 고분자 연료전지 스택의 개발에 있어 매우 중요하다.

고분자 연료전지 시스템의 다른 중요 구성요소인 연료공급부는 고분자 연료전지의 연료로 공급되는 수소를 생성하여 공급하는 역할을 한다. 메탄올을 개질하여 다량의 수소를 포함하는 혼합가스를 생성하고 정제하는 장치가 연료공급부를 구성한다. 이와 같은 연료 처리장치에 관한 연구는 선진외국에서는 이미 많이 수행되어 오고 있다. 특히 최근에는 연료처리장치의 보다 소형화, 경량화, 단순화, 자동화 및 연료의 다변화 등에 관한 연구가 집중되고 있다. 또한 연료처리장치를 포함하는 고분자 연료전지 전체 시스템의 조합 운전에 관한 연구도 활발히 진행되고 있다. 그러나 우리 나라에서는 아직까지 고분자 연료전지 시스템에 관한 연구는 미미한 상태이다. 고분자 연료전지의 상용화를 앞당기기 위해서는 연료전지 스택기술 뿐만 아니라 스택을 운전하는데 필요한 각 구성요소를 조합하여 시스템화하는 기술을 확보하는 것이 필요하다.

본 연구에서는 5kW급 고분자 연료전지의 스택을 제작하기 위해 개발한 전극/전해질막 접합체 제조기술과 스택 제작에 적용한 스택의 구조 및 유로형상에 관해 기술하고, 연료 개질기를 포함하는 5kW급 고분자 연료전지 시스템의 구성

요소의 제작 운전에 관한 내용을 기술하고자 한다.

2. 5kW급 스택의 제작

2.1 전극/전해질막 접합체

전극/전해질막 접합체(MEA) 제작에 사용한 전해질막은 3% H_2O_2 수용액속에서 유기 불순물을 제거한 다음, 20% NaOH 수용액으로 처리하여 Na^+ 형태로 바꾸었다. 전극용 슬러리는 5wt% NAFION 용액, 40wt% Pt/C (공기극), 30wt% Pt-Ru/C (연료극) 촉매와 글리세롤을 사용하여 제조하였다. 이 슬러리를 이형판에 코팅한 다음 건조시켜서 전해질의 양면에 열간 압축하여 코팅층이 전해질막에 전사되도록 하였다. 전극의 백금함량은 0.2 mg Pt/cm^2 로 조절하였다. 이렇게 제조한 MEA는 0.5M H_2SO_4 용액으로 처리하여 사용하였다. 가스 확산층은 탄소천에 탄소분말과 PTFE 현수액을 섞은 슬러리를 코팅하여 방수처리하여 사용하였다.

2.2 스택의 구조 및 유로 형상

스택에 적용할 수 있는 대면적 단위전지를 수차에 걸쳐 제작하였으며, 발생한 스택의 구조와 유로형상의 문제점을 보완하였다. 처음에 제작한 대면적 단위전지는 유입구와 세로방향의 직선형 유로를 연결하는 가로방향의 긴 회랑을 갖고 있다. 전기화학반응이 바이폴라판 전체에 걸쳐 고르게 일어나려면 반응가스가 각 직선유로에 고르게 공급되어야 한다. 이를 위해서는 회랑의 내용적이 커야하므로 바이폴라판의 두께가 두꺼워지게 된다. 또한 직선형 유로의 경우 공기극쪽의 유로내에 물방울이 맺힌 것을 대면적 단위전지 실험 후에 관찰할 수 있었다. 이는 반응가스의 원활한 흐름을 방해할 수 있으므로 직선유로의 길이에 따른 압력손실을 크게 하여 물방울 맺힘을 방지하여야 한다.

바이폴라 탄소판의 두께를 줄이고 유로의 길이에 따른 압력손실을 크게 하기 위해 회랑을 없애고 유입구와 출구 사이를 유로로 직접 연결하였으며, 유로의 수를 줄여서 유로가 바이폴라판의 전체면적을 S자 형태로 채우도록 하여 유로의 길이를 길게하였다. 반응가스 및 물의 유입구를 바이폴라 탄소판의 모서리부분에 위치시키고 S자형 가스유로는 면적을 최대한 크게 하여 바이폴라판의 가운데에 가공하였다. 유입구의 크기는 개질가스와 공기로 운전할 때 필요한 유량을 고려하여 각각 결정하였다. S자형 유로의 단면적과 수는 압력손실의 컴퓨터 모사와 실제 단위전지 성능 실험을 통하여 결정하였다.

스택은 내부가습부와 반응부로 구성되며 필요에 따라 내부가습부 없이도 사용이 가능하도록 제작하였다. 반응기체는 먼저 가습부에서 가습한 후 반응부에

공급되도록 하였으며, 공기는 위에서 공급되고 개질가스는 밑에서 공급되도록 스택구조를 제작하였다. 이렇게 함으로서 공기극에서 발생하는 반응 생성물인 물의 제거를 용이하게 하였다. 이와 같은 구조로 2kW급 스택을 제작하여 성능을 평가하였으며 냉각판의 유로형상을 보완하여 내부가습부 없는 5kW급 스택을 제작하였다. 5kW급 스택은 가스유로의 면적이 300 cm² 인 바이폴라 탄소판과 총 100 개의 MEA로 구성되었으며 각 전지 바로 이웃에 냉각판이 설치되어 있다.

3. 5kW급 시스템의 제작

3.1 메탄올 개질기

메탄올 개질기는 메탄올을 촉매를 이용하여 물이나 산소와 반응시켜 수소와 이산화탄소를 얻는 장치이다. 본 연구에서 개발한 메탄올 개질기는 수증기와 산소가 동시에 메탄올과 반응하는 부분산화법을 사용하였다. 따라서 메탄올과 물을 몰비로 1:1로 섞은 메탄올 용액과 공기를 반응기의 촉매상에서 반응시켰다. 메탄올 개질기는 메탄올 용액을 증발시키는 증발기와 개질반응이 일어나는 반응기 그리고 CO 제거기로 구성된다. 증발기는 순수한 메탄올을 백금 촉매상에서 공기중의 산소와 반응시킬 때 발생하는 반응열을 이용하여 연료로 공급되는 메탄올 용액을 가열하여 증발시키는 역할을 한다. 기화된 연료는 반응기에 공급되어 구리산화물과 아연산화물로 된 촉매상에서 공기중의 산소와 반응하여 수소가 50% 이상 포함된 개질가스를 생성한다. 정상운전 상태일 때 증발기의 온도는 약 150 °C로 유지하고 반응기의 온도는 470 °C를 유지하였다. 이때 반응기에 공급되는 메탄올 용액의 공급 속도는 88g/min 이고 공기의 공급속도는 27 L/min 이었으며 개질가스중의 수소는 약 5600 L/min 이 생성되었다.

개질가스중에 존재하는 CO를 제거하기 위해 Pt-Ru 촉매를 사용하여 선택산화 반응기(PROX)를 제작하였으며, 이를 개질반응기의 출구에 연결하였다. PROX의 온도는 200 °C를 유지하도록 개질가스의 공급온도와 공급공기의 유량을 조절하였다. PROX 반응기를 통과한 개질가스의 품질은 소형 단위전지의 성능 시험을 통해 평가하였다. PROX에 공급되는 공기의 총 유량은 약 12 L/min 이었다.

3.2 스택 운전 설비

공기공급부는 연료공급부와 연료전지 스택에 공기를 공급하는 역할을 하며 공기압축기와 정제기로 구성되었다. 냉각부는 연료전지 스택과 연료공급부에서 발생하는 반응열을 제거하고 반응가스에 수분을 공급하는 역할을 한다. 냉각수

는 가습부에 공급되는 물로도 사용되기 때문에 증류수를 사용하였으며 이온교환 수지와 같은 정제기를 거쳐 순환시켰다. 운전제어부는 연료공급부에 공급되는 연료 및 공기의 유량, 연료전지 스택에 공급되는 유량 및 가습부와 냉각부의 각종 밸브를 제어한다. 전자부하 및 데이터 획득부는 컴퓨터가 장착된 전자부하로 연료전지 스택에서 발생하는 전력을 정전류 및 동전류 모드로 소모하면서 전류와 전압을 기록한다. 인버터는 연료전지에서 발생하는 직류전력을 교류전력으로 변환시키는 역할을 하며 여러 가지 교류부하를 적용할 수 있게 해준다.

4. 시스템의 운전

메탄을 연료개질부와 냉각순환부를 포함한 운전시스템의 대략적인 계통도를 그림 1에 나타내었다. 그림 2는 그림1의 계통도에 따라 제작한 시스템과 고분자 연료 전지스택을 연계하여 운전하는 모습을 보여주고 있다. 그림 3에서는 5kW급 스택을 제작하기 전에 스택의 구조 및 유로형상에 대한 검증을 위해 수행한 소규모 전지의 운전 결과를 보여주고 있다. 수소와 산소로 운전한 결과 20개의 전지로 구성된 스택에서 2kW의 성능을 얻었다. 그러나 이 스택의 경우 장시간 운전시 스택온도가 증가하는 경향을 보였다. 따라서 5kW급 스택의 제작시에는 이를 고려하여 냉각판의 유로를 보다 간단한 새로운 형태로 제작하였다. 그림 4는 5kW급 스택을 수소와 공기로 운전했을 때의 성능 곡선을 보여준다. 이 경우 5kW이상 최대 7kW까지의 성능을 얻을 수 있었다. 그러나 동일한 스택을 시스템에 연계하여 개질가스와 공기를 사용하여 운전하였을 때는 성능이 3.5kW로 떨어지는 것을 그림 5에서 보여준다. 이와 같은 성능의 저하는 개질가스 중에 잔존하는 CO의 농도가 전극의 촉매를 피독시킬 만큼 충분하다는 것을 의미한다. 개질기 운전조건의 순간적인 변화로 인해 과량 유입되는 CO가 스택의 성능을 크게 떨어뜨릴 수 있다. 따라서 개질기의 최적 운전조건의 확립과 아울러 안정적인 운전에 대한 연구가 필요하다. 앞으로 이에 대한 연구를 지속적으로 수행할 예정이다.

5. 결론

본 연구에서는 고분자 연료전지 시스템의 구성요소를 각각 개발하고 이를 상호 연계하여 일체형 시스템을 제작 운전하였다. 전극면적 300 cm² 인 100개의 전지로 구성된 고분자 연료전지 스택을 제작하여 수소와 공기로 운전하여 7kW의 성능을 얻었다. 부분산화법에 의한 메탄을 연료개질기를 개발하여 스택 운전설비에 장착하였으며, 개질가스와 공기로 스택을 연계운전 한 결과 3.5kW의 성능

을 얻었다. 이 같은 성능의 감소는 개질기 운전조건의 순간적인 변화로 인한 개질가스 중의 CO 농도 증가에 관련되어 있는 것 같다. 현재 보다 안정적이고 최적화된 개질기 운전 조건에 대한 연구를 진행하고 있다.

참고문헌

1. Chun, Y.-G., Kim, C.-S., Peck, D.-H., Shin, D.-R., 1998, "Performance of a polymer electrolyte membrane fuel cell with thin film catalyst electrodes", J. Power Sources, vol. 71, pp.174-178.
2. Chun, Y.-G., Kim, C.-S., Peck, D.-H., Chung, D.-H. and Shin, D. R., "Performance Evaluations of Membrane Electrode Assemblies Made by Transfer Printing Technique," 1998 Fuel Cell Seminar, Nov.16-19, 1998, Palm Springs, California, USA, (English).
3. 김창수 외, 5kW급 고체고분자 연료전지 시스템 개발, 한국에너지기술연구소, 연구보고서, 1996N-FC01-P-01, 통상산업부 (1999).

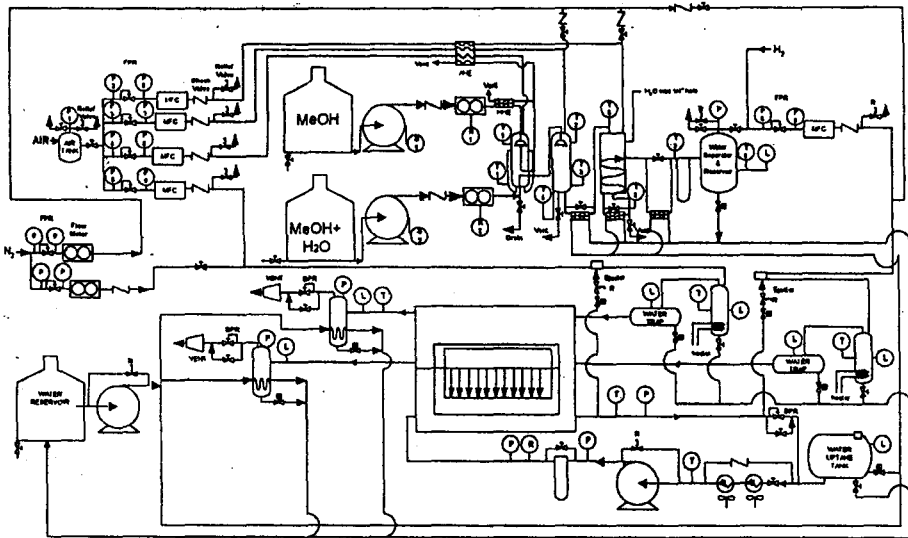


그림 1. 고분자 연료전지 시스템의 계통도

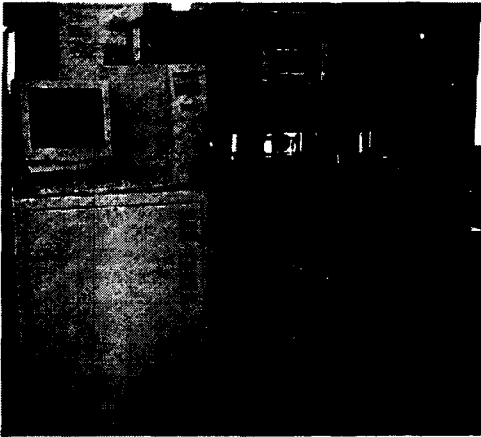


그림 2. 5kW급 고분자 연료전지 시스템

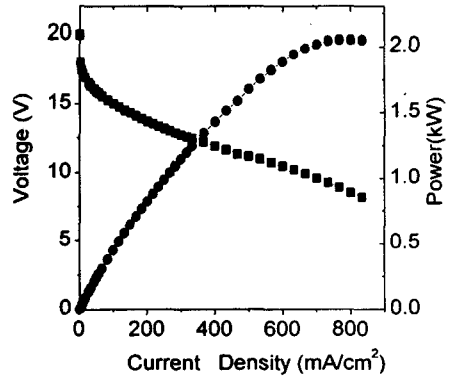


그림 3. 전극면적 300cm² 인 20 개의 전지로 구성된 2kW급 고분자 연료전지 스택의 성능 곡선 (수소/산소운전)

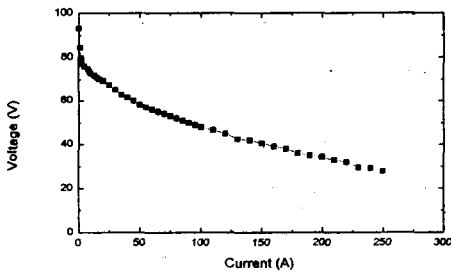


그림 4. 전극면적 300cm² 인 100개의 전지로 구성된 5kW급 고분자 연료전지 스택의 성능곡선 (수소/공기 운전)

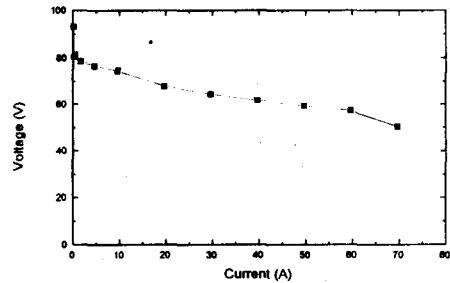


그림 5. 전극면적 300cm² 인 100개의 전지로 구성된 5kW급 고분자 연료전지 시스템의 성능곡선(개질가스/공기 운전)