

## 인산형 연료전지 스택의 전산모사

최성우, 이갑수\*, 김화용

서울대학교 응용화학부, 김포대학 환경토목과\*

### Simulation Study of the Phosphoric Acid Fuel Cell Stack

*Sungwoo Choi, Kab soo Lee\*, Hwayong Kim*

*School of Chemical Engineering, Seoul National University*

*Dept. of Environmental & Civil Engineering, Kimpo college\**

#### 요 약

연료전지는 환경 친화적 대체에너지로 지속적인 연구가 이루어지고 있다. 최근에는 연료전지의 실용화를 위해 적층, 대면적화에 대한 기본 기술이 중요사되고 있다. 그러나 연료전지중 가장 많은 기술적 발전을 이룬 인산형 연료전지에 관해서도 연료전지 설계의 기초자료가 되는 스택의 온도 분포에 대한 연구는 거의 발표되지 않았다. 본 연구에서는 인산형 연료전지 스택의 온도 분포를 전산모사하였다. 이를 통하여 여러 작동 조건에서 스택의 온도 분포를 알아내었으며, 스택 운전시 적절한 온도 측정 위치를 예측할 수 있었다. 또한 냉각단의 유로를 변경하여 전산모사를 수행한 결과 스택 내부의 온도 분포의 표준 편차를 약 50% 감소시키는 효과적인 냉각 디자인을 제안할 수 있었다.

**ABSTRACT :** The fuel cell has been continuously studied as environment-compatible alternative energy technology. Lately the basic techniques about stacking and widening are considered to be important for practical use. Although phosphoric acid fuel cell (PAFC) is the most progressed one in the fuel cell technologies, few studies about temperature profile of the stack which can be the basic data for the fuel cell design have been reported yet. In this study, the temperature profile of PAFC stack was simulated. The temperature profiles of stack were obtained at various operating conditions, and when stack is operated the proper position to measure the temperature could be predicted. Also we can propose more effective cooling design. The standard deviation of the temperature profile of the proposed design was about 50% smaller.

## 1. 서 론

사람들의 더 많은 것, 더 좋은 것에 대한 욕구는 끊임이 없으며, 현대사회에서 에너지 사용량의 꾸준한 증가는 그 한가지 예이다. 에너지 사용량의 꾸준한 증가는 화석에너지의 고갈을 부추기고 있다. 그리고 기존의 화석에너지의 사용 방법은 환경오염을 유발하여 사회문제가 되고 있다. 이에 대한 대안으로 새로운 에너지원의 개발과 효율적 에너지 관리가 제시되고 있다. 따라서 원자력, 태양열, 풍력, 조력 등 새로운 에너지의 개발과 함께 열펌프, 연료전지 등 기존의 화석에너지를 효율적으로 이용하면서도 공해를 유발하지 않는 방법을 모색하게 되었다.

연료전지의 발전 원리는 1839년 영국의 Grove에 의하여 제안되었다[1]. 그 후 기술 발전이 비약적으로 이루어져 지금에 와서는 화석연료의 연소에 의한 발전을 대신할 수 있는 차세대 전력생산의 강력한 후보로 등장하는 수준에 이르렀다.

연료전지는 두 개의 전극과 전해질을 내장하고 있는 등 원리와 구조상 일반 화학전지와 유사하다. 그러나 한정된 에너지를 저장하는 장치인 화학 전지에 비해 연료전지는 연료와 산화제를 공급하는 한 연속적으로 전기를 생산하는 새로운 개념의 발전기라는 것이 차이점이다[2].

연료전지의 전기화학적 작동원리는 전해질의 종류에 상관없이 모두 동일하다. 연료로 쓰이는 화합물이 음극에서 전기화학적으로 산화되면서 전자를 내어놓고 양극에서는 연료에 상대적인 화합물이 환원되면서 전자를 받아내는 자발적 과정을 이용하여 화학에너지를 전기에너지로 변환하는 것이다(Fig. 1).

연료전지는 기존의 화력발전과는 달리 화학에너지를 직접 전기 에너지로 전환하는 기술이므로 카르노사이클의 제약을 받지 않아, 그 효율이 높아서 한정되어 있는 화석에너지의 이용 효율을 높일 수 있다. 또한 기존의 발전 설비에 비해 건설 기간이 짧고 위치에 구애받지 않으며 입자 면적도 작으므로, 필요한 장소에 분산 설치가 가능하여 송배전 설비비용을 줄일 수 있는 등 여러 가지 장점이 있다. 더욱이 연료전지 스택에서 연료로 수소기체를 아용하기 때문에 부산물로는 물만 나오므로 공해의 요인이 없다는

면과 터빈 등의 회전 없이 소음과 진동이 거의 없다는 환경적 측면에서의 큰 장점을 지니고 있다[3-5].

연료전지의 발전 설비는 연료 개질기(Reformer)와 연료전지 스택(Stack), 직류 교류 변환기(D/A converter)로 구성된다. 이중 연료전지 스택은 전기를 발생시키는 부분으로 연료전지 발전 설비의 핵심이라고 할 수 있다. 연료전지 스택은 단위전지가 적층되어 이루어지며, 적층된 단위전지의 성능과 적층 기술에 따라 연료전지 스택의 성능이 좌우된다.

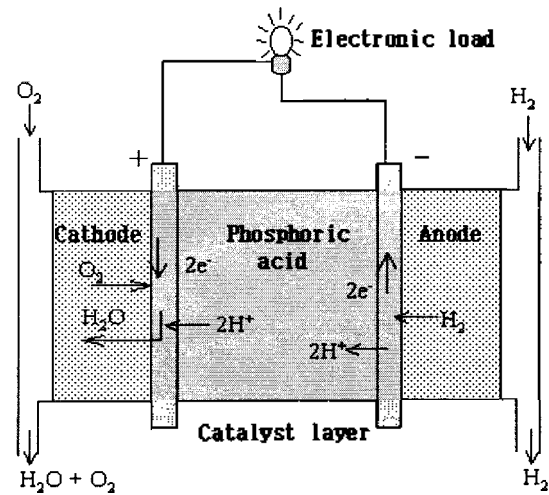


Fig. 1. Operational principle of the fuel cell.

인산형 연료전지는 온도가 증가함에 따라 반응속도가 증가하여 전지 저항과 분극을 줄여 전지의 성능을 향상시킨다. 따라서 부품의 내구성을 손상시키지 않는 한 높은 온도에서 작동하는 것이 좋고[6], 전지 내의 온도 분포는 되도록 균일해야 최대의 성능을 얻을 수 있다. 그러나 인산형 연료전지는 전해질의 특성 및 전극의 내구성 때문에 전지 내의 온도가 180~200℃의 범위 내에서 작동해야 하는 제약이 따른다.

최근에는 스택의 크기가 커짐에 따라 스택 내의 온도 분포를 균일하게 하기 위해 스택에서 발생하는 열을 제거하는 것이 중요하게 되었다. 그런데, 스택의 크기가 커짐에 따라 실험을 통해 필요한 데이터를 모으는데 시간적·경제적 어려움이 따르게 되었다. 특히 스택 내부의 온도 분포를 실험적으로 구한

다는 것은 현실적으로 거의 불가능한 일이다. 따라서 실험을 보완할 수 있는 방안으로 전산모사가 시도되고 있다.

전산모사를 통하여 연료전지 스택의 성능을 정확하게 예측하기 위해서는 물질 전달 및 에너지 전달 현상과 전기 화학 이론 등의 상호 연관된 방정식을 모두 해석해야만 한다. 이들은 복잡한 미분방정식의 형태로 되어있기 때문에 이론적인 전개에 의한 해를 구하는 것은 사실상 불가능하고 수치 해에 의존할 수밖에 없다.

본 연구에서는 전산모사를 통하여 여러 작동 조건에서 스택의 온도 분포를 알아내었으며, 스택 운전 시 적절한 온도 측정 위치를 예측할 수 있었다. 또한 냉각단의 유로를 변경하여 전산모사를 수행한 결과 더 효과적인 냉각 디자인을 제안할 수 있었다.

## 2. 전산모사

### 2.1. 모사대상

본 연구에서는 국내 A사에서 제작, 실험을 한 10 kW급 PAFC스택을 모사 대상으로 삼았다. 스택은 18개의 단위전지와 4개의 냉각단으로 구성되었다. 최하단에 냉각단이 있었으며 그 위의 단위전지 6개마다 냉각단을 올려놓은 형식으로 되어있었다[7].

냉각방식은 냉각수의 증발열을 이용하는 boiling-water 냉각방식이며, 냉각관은 3/8" 동관으로 serpentine type이었다(Fig. 2). 반응 가스의 통로는 Z-type flow이었다(Fig. 3-4). 스택의 냉각수 및 연료는 외부형 매니폴드로 공급하므로 모사 시스템에 포함시키지 않았다. 스택의 치수와 해석조건은 Table 1에 나타내었다.

모사 결과를 토대로 새로운 냉각 유로에 대한 grid를 만들어 모사를 해 보았다(Fig. 5).

실제 실험장치를 모사한 시스템을 A, 새로운 냉각 유로를 사용한 모사 시스템을 B라 부르겠다. 이후의 모든 그림은 시스템을 위에서 본 모습이다.

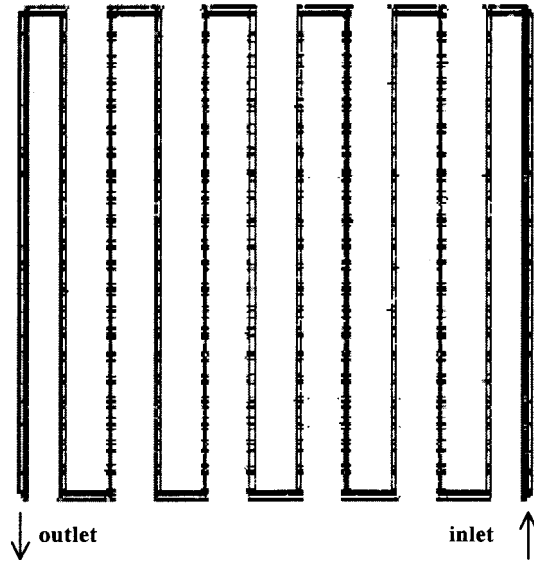


Fig. 2. Calculation grid of cooling channel.

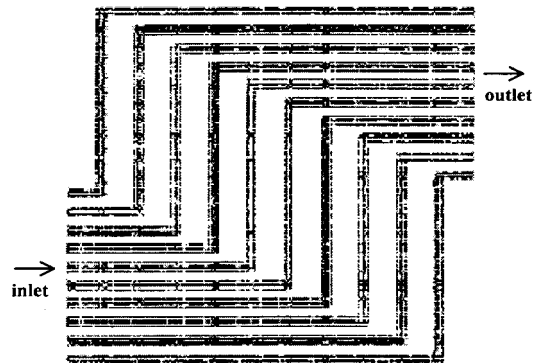


Fig. 3. Calculation grid of anode channel.

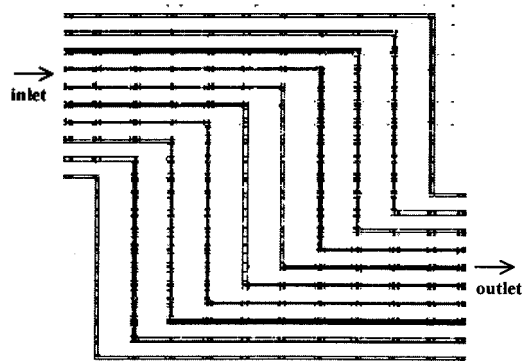


Fig. 4. Calculation grid of cathode channel.

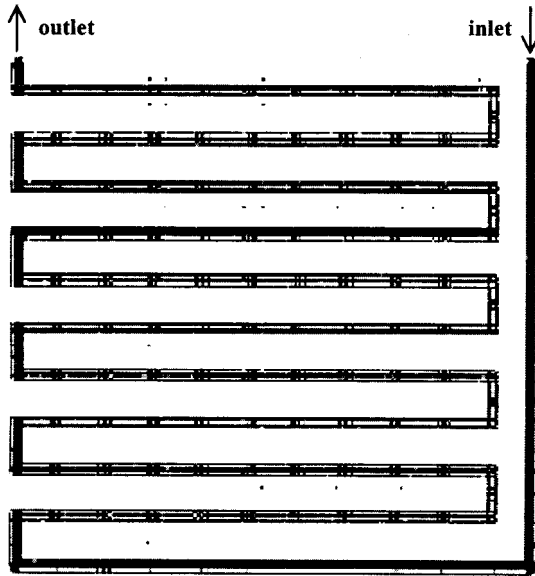


Fig. 5. Calculation grid of modified cooling channel.

Table 1. Principle Analysis Conditions

Power(kW)	6.5	9	11
Inlet gas composition	Anode : H <sub>2</sub> 100 wt% Cathode : O <sub>2</sub> 21.3 wt% N <sub>2</sub> 78.7 wt%		
Inlet gas temperature(K)	Anode : 413.15 Cathode : 393.15		
Anode gas(H <sub>2</sub> ) flow rate(L/min)	150	200	200
Cathode gas(Air) flow rate(L/min)	300	400	450
Inlet cooling-water temperature(K)	437.65	432.65	418.55
Cell area(cm)	65 × 65		
Active area(cm)	60 × 60		
Gas inlet area(cm)	1.36 × 0.15		

## 2.2. 모사방법

실제 연료전지 스택에서는 여러 가지 변수의 예측하기 힘든 교란(Fluctuation)이 발생한다. 예를 들어 암모니아에 의한 전해질의 변성[8], 수성가스전이 반응[9] 등은 너무 복잡해서 그대로 모사 할 수 없으므로 약간의 가정이 필요했다. 본 연구에서 사용된

가정들은 다음과 같다.

- 스택은 정상상태이다.
- 스택의 주위는 단열이 되어있다.
- 냉각수의 증발량은 냉각단 유로 모든 지점에서 동일하다.
- 매니폴드를 통해 공급되는 가스는 균일한 분포를 이룬다.
- 반응량은 전극판 유로 모든 지점에서 동일하다.
- 부반응들은 고려하지 않았다.
- 스택내 모든 유체의 흐름은 층류 흐름이다.

유동과 화학반응에 관한 미분 방정식의 수치해를 구하기 위하여 전산유체역학(CFD) 기법을 도입하였다. 이산화 수치 해석 기법 중 유한체적법(Finite volume method : FVM)을 사용하는 상용 CFD (Computational fluid mechanics) code인 FLUENT Version 5.1을 사용하였다[10].

유체의 질량, 운동량, 에너지, 화학종 보존방정식은 Fluent에 내장되어 있는 식을 사용하였다.

스택내에서의 전압강하는 실험 결과를 전류와 온도의 함수로 fitting하여 사용하였다.

$$\Delta V = 8.75 \times 10^{-5} I - 1.2 \times 10^{-3} T + 0.937 \quad (1)$$

따라서 단위전지에서의 국부전압은 다음과 같다.

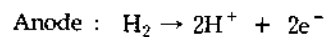
$$E = E^{\circ} - \Delta V \quad (2)$$

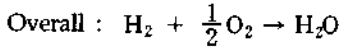
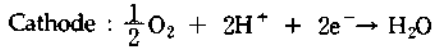
증발에 의한 잠열 항은 수증기표의 데이터를 400~460K 범위에서 fitting하여 사용하였다.

$$\Delta H = -(3526 - 3.34 T) \times \Delta m \quad (3)$$

여기서,  $\Delta m$  은 질량 변화량이다.

스택내부에서의 화학반응은 다음과 같다.





음극 가체로는 수소(100%)가 주입되고, 양극 기체로는 공기(수소+질소)가 주입된다. 단위전지의 두께는 8.04mm이며, 냉각단의 두께는 14mm이다. 모사의 편의를 위하여 단위전지에서 유로의 수를 양극, 음극 각 10개로 단순화하였으나 입구 총면적은 실제 시스템과 동일하게 하였다.

모사 대상이 z방향으로 대칭구조를 이루고 있으므로 전체 시스템의 1/6인 단위전지 3개와 냉각단의 1/2을 모사 하였다. 계산 격자의 수는 x, y, z 방향으로 각각 47, 87, 43개로 총 175827(=47×87×43)개이다. 본 논문의 각 그림의 가로 방향이 x 방향, 세로방향이 y 방향, 그림에 나타나지 않는 공간상의 위쪽이 z 방향을 의미한다.

수치해석상의 수렴조건은 Enthalpy Normalized Residual이 10<sup>-6</sup> 이하, 그 외의 물성치에 대한 모든 Normalized Residual의 합이 10<sup>-3</sup> 이하로 되는 것으로 하였고, 연속방정식의 해를 얻기 위한 반복 계산을 수행시키는 역할을 하는 속도-압력 중첩 알고리즘은 수렴 속도가 빠른 SIMPLE 알고리즘을 사용하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 스택 내부의 온도 분포

실험결과와 전산모사 결과의 비교를 Table 2에 나타내었다. 온도는 Fig. 6 ~ 8에서 왼쪽 아래 꼭지점을 기준으로 전체길이의 오른쪽으로 1/4, 위로 1/4 위치에서의 측정 또는 모사 결과이다. 전압은 단위전지의 전압이다. 실험결과와 모사결과가 2% 오차범위 내에서 일치한다.

전산모사 결과 출력이 약 6.5 kW, 9 kW, 11 kW일 때의 스택 내부의 온도 분포를 알 수 있었다. 스택의 오른쪽 부분이 온도가 높고 왼쪽으로 갈수록

온도가 떨어지는 분포를 나타내었다.

각 경우의 온도 분포는 모두 비슷한 양상을 나타내었다. 이에 대한 전산모사 결과는 Fig. 6 ~ 8에 도시하였다. 스택의 온도를 측정할 부분은 가장 온도가 높은 곳으로서 그림 상으로 좌측에서 55cm, 상하로는 가운데 부분이 적당하다.

이러한 온도 분포를 나타내는 원인을 알기 위하여 냉각을 하지 않았을 경우를 모사하여 보았다. 출력이 약 11 kW일 경우의 온도 분포는 Fig. 9와 같이 나타난다. 오른쪽 중간에서 약간 아래쪽이 가장 온도가 높고 왼쪽 위로 갈수록 온도가 떨어지는 분포를 나타낸다. 이의 원인은 cathode channel에서의 유량이 anode channel보다 많으므로 생성된 열이 cathode gas를 통해 전달되기 때문으로 생각된다.

Table 2. Comparison between Experimental Data and Simulation Data

Stack Power (kW)	Temperature (K)		Voltage (V)	
	Experiment	Simulation	Experiment	Simulation
6.5	445.9	445.5	0.707	0.710
9	453.9	448.9	0.697	0.696
11	462.7	464.7	0.669	0.679

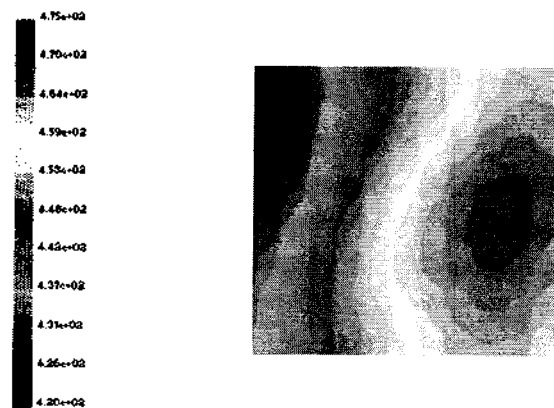


Fig. 6. Temperature profile of stack A (6.5 kW).

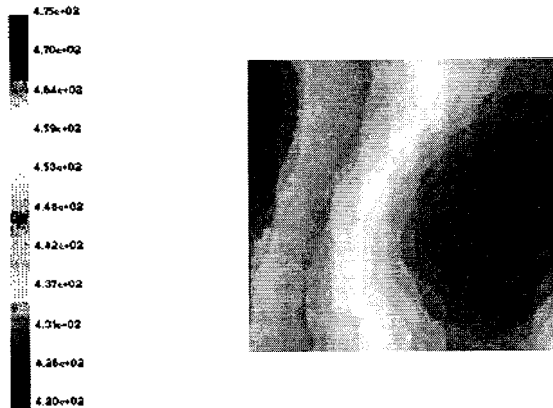


Fig. 7. Temperature profile of stack A (9 kW).

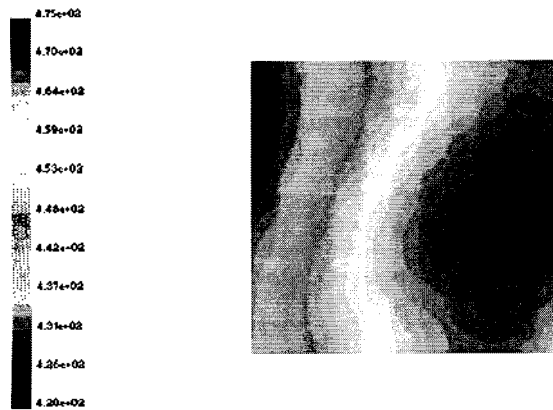


Fig. 8. Temperature profile of stack A (11 kW).

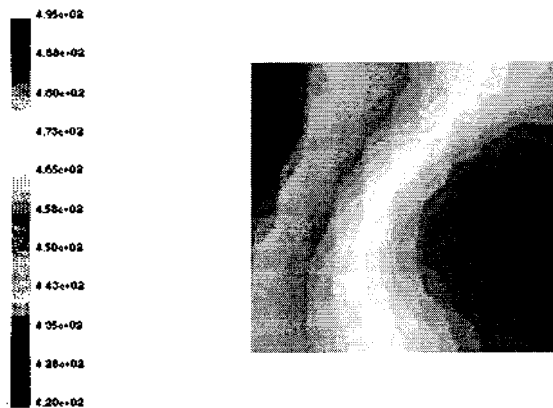


Fig. 9. Temperature profile of stack A (11 kW, no cooling).

### 3.2 새로운 냉각 채널을 이용한 경우의 온도 분포

스택 A에서는 냉각수가 주입되어 고온부에서 저온부로 이동하도록 설계되어 고온부에서 충분한 냉각이 이루어지지 않는다는 판단을 하게 되었다. 따라서 냉각수가 고온부와 저온부를 번갈아 지나가도록 냉각 채널을 설계하였다(Fig 5).

스택 A와 B의 냉각단에서 가장 먼 쪽의 온도가 가장 높은 부분의 단위 전지의 전해질 부분 중 100 곳을 선택하여 얻은 온도 분포를 비교하여 Table 3에 나타내었다. 100곳은 냉각단을 가로, 세로 각 6.5 cm의 정사각형으로 분할하여 그 무게중심으로 정하였다.

같은 운전 조건에서 스택 B가 평균 온도는 높지만 온도의 편차가 약 50% 줄어드는 결과를 나타내었다. 이는 스택의 내구성을 손상시키지 않으면서도 더 높은 출력을 기대할 수 있음을 의미한다.

스택 A와 B의 냉각 채널의 온도 분포를 보면 스택 B의 냉각 채널의 온도 분포가 고름을 확인할 수 있다(Fig. 10 ~ 11). 또한 스택 B의 각 출력별 온도 분포를 Fig. 12 ~ 14에 도시하였다. 출력이 증가할수록 최고온부가 스택의 중앙으로 이동함을 알 수 있다.

Table 3. Standard Deviation of Temperature at Bottom Matrix

Stack Power (kW)	Stack A		Stack B	
	Average (K)	Standard deviation (K)	Average (K)	Standard deviation (K)
6.5	452.7	11.6	454.7	6.00
9	457.4	13.1	468.6	6.76
11	457.5	13.1	458.1	6.09

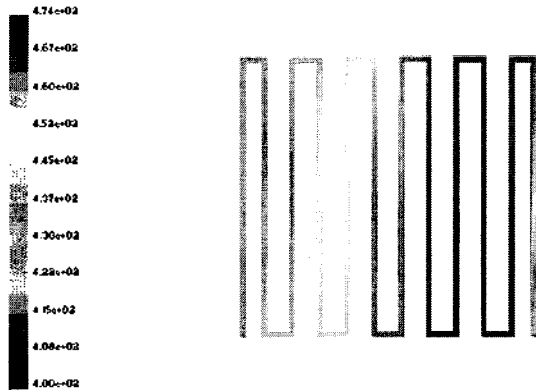


Fig. 10. Temperature profile of cooling channel (stack A, 11 kW).

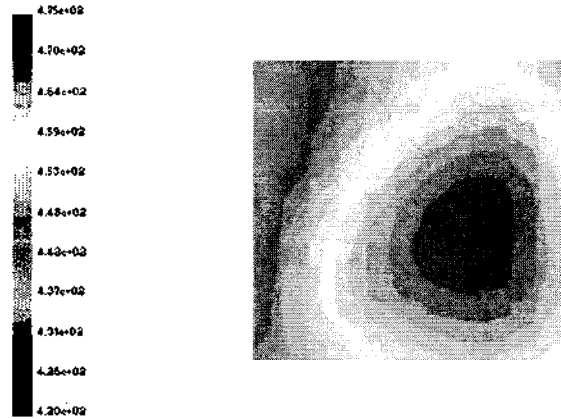


Fig. 13. Temperature profile of stack B (9 kW).

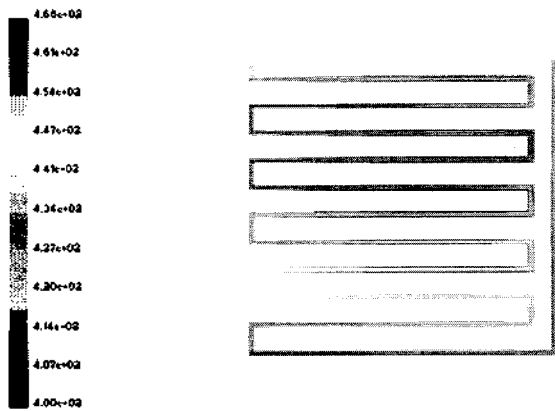


Fig. 11. Temperature profile of channel (stack B, 11 kW).

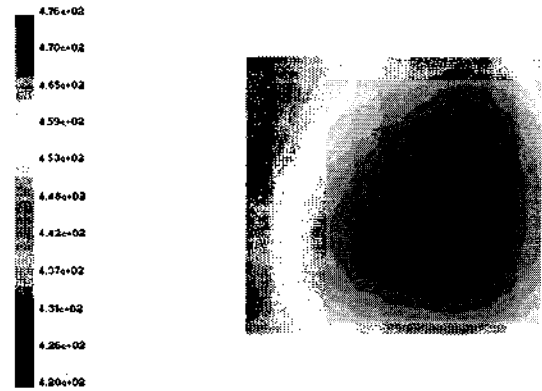


Fig. 14. Temperature profile of stack B (11 kW)

#### 4. 결 론

본 연구에서는 인산형 연료전지 발전설비의 효율과 성능을 결정하는 중요한 변수인 스택 내에서의 온도 분포에 대한 전산모사를 하였다. 모사대상은 전극 면적 4225 cm<sup>2</sup>(65 cm×65 cm)이며, 단위전지를 18개 적층한 10kW급 스택이었다. 전산유체역학 기법을 사용하였으며, 결과는 다음과 같다.

1. 스택 내의 3차원 유동에 대한 해석을 통하여 스택 내부의 온도 분포를 해석하였으며 이를 통하여 시스템의 제어를 위해 필요한 온도 측정 위치를 제안할 수 있었다.

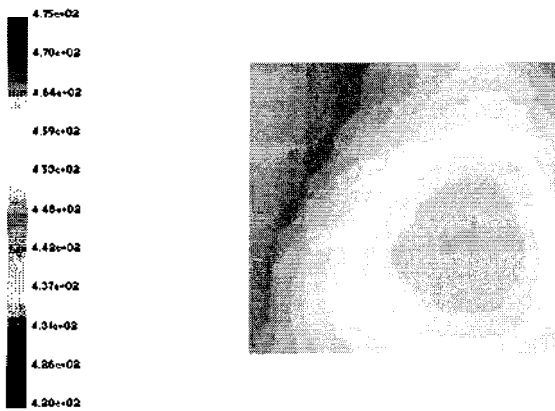


Fig. 12. Temperature profile of stack B (6.5 kW).

2. 새로운 냉각 유로를 설계하여 기존의 장치에 비하여 향상된 온도 분포를 얻었다. 평균온도는 약간 높지만 온도의 편차가 약 50% 줄어드는 결과를 나타내었다. 이는 스택의 내구성 및 출력향상을 기대할 수 있음을 의미한다.
3. 전산유체역학 기법을 사용하여 엄밀해를 구하기 힘든 중첩된 편미분방정식의 이산해를 구하여 복잡한 geometry를 가진 시스템에 대해 운전조건을 예상하여 실제 실험 또는 운전에 유용한 정보를 제공할 수 있었다.

### 감사의 글

본 연구는 2000년도 두뇌한국 21사업과 서울대 화학공정 신기술연구소의 지원 하에 이루어졌습니다. 두뇌한국 21사업과 서울대 화학공정 신기술연구소에 감사 드립니다.

### Nomenclature

- $E$  : local voltage  
 $E^{\circ}$  : standard reversible potential  
 $\Delta H$  : change in enthalpy  
 $I$  : current  
 $\Delta m$  : change in mass  
 $\Delta V$  : change in voltage  
 $T$  : temperature

### 참고 문헌

- [1] L. J. M. J. Blomen and M. N. Mugerwa, "Fuel Cell Systems", Plenum Press, pp.19~20(1993).
- [2] A. J. Appleby and F. R. Foulkes, "Fuel Cell Handbook", Van Nostrand Reinhold, p.3(1989).
- [3] C. Berger, "Handbook of Fuel Cell Technology", Prantice-Hall, pp.539~570(1968).
- [4] K. Kinoshita, F. R. McLarnon and E. J. Cairns, "Fuel Cell A Handbook", Lawrence Berkeley Laboratory, pp.20~21(1988).
- [5] "인산형 연료전지용 단위전지 요소기술 개발에 관한 최종보고서", 통상산업부, pp.827~829 (1998).
- [6] 노용우, 설용진, 이태희, "연료전지의 기술현황", 화학공업과 기술, 제6권, 제1호 (1988).
- [7] "인산형 연료전지 50kW급 스택제조 및 운전기술개발에 관한 연구", 산업자원부, pp.373~379(2000).
- [8] S. T. Szymansky, G. A. Gruver, M. Katz, and H. R. Kunz, "The Effect of Ammonia on Hydrogen-Air Phosphoric Acid Fuel Cell Performance", J. Electrochem. Soc. 127, 1440(1980).
- [9] Yuko Sone, Haruo Kishida, Makoto Kobayashi and Takao Watanabe, "A study of carbon deposition on fuel cell power plants - morphology of deposited carbon and catalytic metal in carbon deposition reactions on stainless steel", Journal of Power Sources, 86, 334 (2000).
- [10] "Fluent User's Guide", Fluent incorporated, pp.17-9~17-23(1998).