

이중촉매 MEA의 성능평가에 관한 연구

김홍건*, 강성수, 박이구, 강영우

A Study on the Performance Evaluation of Double-Layered Catalyst MEA

Hong Gun Kim, Sung Soo Kang, Lee Ku Kwac, Young Woo Kang

Abstract An experimental and numerical study is carried out to investigate the performance and the efficiency humidifying Membrane Electrolyte Assembly and having the double-layered catalyst in a fuel cell system which is taken into account the physical and thermal concept. Based on the principals of the problem, the equation of electronic charge conservation equation, gas-phase continuity equation, and mass balance equation are used for the numerical calculation. A unit cell for 200cm² MEA is assembled and measured for finding better operational situation. After finding the optimal condition, 10 cell stacked PEMFC is fabricated. For the performance evaluation, V-I and power curves are examined in detail by changing the condition of humidity, temperature, pressure, thickness of catalyst and oxidant. It is found that the power is maximized around 500W at 80A.

Key words Double-Layered(이중구조), MEA(전해질막), PEMFC(고분자전해질연료전지), Catalyst(촉매), Ion Conductive(이온전도성), Hydrophobic(소수성)

* 전주대학교 기계자동차공학과

□ E-mail : hkim@jj.ac.kr □ Tel : (063)220-2613 □ Fax : (063)220-2959

1. 서론

최근 들어 화석연료를 대체할 에너지원으로서 수소 에너지에 대한 관심이 높아지고 있다. 현재 사용되는 1차 에너지원의 거의 대부분을 차지하는 화석연료는 다량의 환경오염물질을 배출하는데다 언젠가는 고갈될 수밖에 없는 유한한 자원이기 때문에 대체 에너지의 개발 필요성이 끊임없이 제기되어 왔다. 그 동안 대체 에너지원의 후보로는 태양에너지, 풍력, 수력, 지열 등이 제시되어 왔으나 지리적 분포에 차이를 보이며 직접 연료로 사용될 수 없다는 단점을 지니고 있었다. 반면 수소는 그 자체로 무한에 가까운 에너지 자원인 데다 환경오염이 없

며, 무엇보다 전기에너지, 기계에너지, 열에너지 등으로 전환이 자유롭다는 장점을 지니는 것으로 평가된다. 지금까지 수소는 석유, 석탄, 천연가스 등의 화석연료, 물, 바이오매스 등의 형태로 존재하기 때문에 생산 비용이 과다하고 그 과정에서 환경오염이 발생할 수 있으며, 보관 및 수송이 어렵다는 문제점 등으로 인해 실용화가 지연되어 왔던 것이 사실이다. 그러나 연료전지(Fuel Cell)의 등장은 수소에너지를 바라보는 시각을 완전히 바꾸어 놓은 계기가 되었다¹⁻³⁾.

연료전지란 수소를 화학적인 반응에 의해 전기에너지와 열에너지로 바꾸는 장치를 말한다. 연료전지는 수소를 직접 이용할 수도 있고 가솔린, 메탄올, 천연가스 등의 개질을 통해 얻은

수소를 이용할 수도 있다. 물론 개질 방식을 택할 때에도 환경 오염을 대폭 줄이는 효과가 있다. 겉으로 보기에는 단순한 제품이나 기술에 불과하지만 연료전지가 지니는 의미는 사실상 대단한 것이다. 연료전지는 막대한 잠재력의 수소에너지를 우리가 직접 이용할 수 있는 형태로 전환하는 도구로 이해할 수 있다. 수소 이용 기술이 동반 발전해야 하겠지만 개념상으로 연료전지는 기존의 에너지 시스템을 혁명적으로 변화시킬 수 있는 가능성을 충분히 내포하고 있다. 현재 많은 국가들이 수소 기반 경제로의 이행을 강조하며, 연료전지를 핵심 요소 기술로 인식하고 있는 이유도 여기에 있다고 할 수 있다⁴⁻⁵⁾.

일반적으로 제작되는 고분자 전해질형 연료전지(Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell)는 전해질(Electrolyte)과 두개의 전극이 샌드위치처럼 포개어져 있는 형태로 산소와 수소가 각각의 전극으로 흘러갈 때, 생성물로서 전기와 열 그리고 물이 만들어진다. 위에서 설명한 연료전지의 구성부품은 고분자 전해질막(Polymer Membrane), 전극(Electrode), 탄소 천(Carbon Cloth) 또는 탄소 종이(Carbon Paper), 탄소판(Graphite Plate) 또는 유로판(Flow Field Plate), 가스켓(Gasket)으로 구성되어진다. 여기서 이온전도성 고분자막으로 된 고분자 전해질막과 그 양쪽에 다공성 가스화산 전극이 설치되어 있는 구조(MEA)로 이루어져 있으며 전극의 지지를 위해 카본 천이나 카본 종이 사용된다. 탄소판 또는 금속판은 가스나 공기가 흐르는 통로를 제공하며 전도성물질로서 전해질과 전극을 지지해주는 역할을 한다. 이와 같은 구조의 각 단위 전지를 분리판으로 서로 연결 결합시킴으로써 스택이 이루어진다. 하지만 전해질 막의 촉매층이 더욱 활성화되기 위해서는 단독으로 사용된 이온전도성 촉매층과 소수성 촉매층으로는 효율향상을 기대할 수 없다. 따라서 본 논문에서는 이온전도성 촉매층과 소수성 촉매층을 결합한 이중 촉매층을 갖도록 전해질막을 설계하고, 이중 촉매구조의 단위전지를 제작하여 성능 분석을 실시하였다.

2. MEA의 촉매층 형성 방법

2.1. 기존의 촉매층 형성 방법

일반적으로 사용되고 있는 막-전극 접합체의 제조방식은 고분자 전해질 용액을 포함한 촉매 페이스트를 제작하여 건조,

형성된 촉매층 필름을 고분자 전해질 막의 양면에 열 압착하여 제작하거나, 촉매 페이스트를 전해질 막 상에 인쇄 또는 스프레이 등으로 도포한 후 건조하여 제작할 수도 있다. 촉매 페이스트는 고분자 전해질 용액뿐 아니라 소수성 고분자 용액을 사용하기도 하며, 고분자 전해질 용액과 소수성 고분자 용액을 혼합하여 사용하기도 한다. 그 후 양쪽바깥 면에 가스화산층을 열 압착하여 완성한다. 다른 방법으로는 가스화산층의 한 면에 스프레이나 인쇄에 의하여 촉매층을 형성한 후, 촉매층이 형성된 가스화산층의 면을 고분자 전해질 막의 양면에 열 압착하여 제작할 수도 있다. 이때에도 촉매 페이스트는 고분자 전해질 용액 또는 소수성 고분자 용액을 사용하며, 고분자 전해질 용액과 소수성 고분자 용액을 혼합하여 사용하기도 한다. Fig 1은 종래의 기술에 따라 촉매층 형성의 바인더로서 이온 전도성 고분자 전해질용액과 소수성 고분자용액을 혼합하여 사용한 경우의 막-전극 접합체를 나타낸 것이다. 촉매 페이스트 제작 시 바인더로서 이온전도성 고분자 전해질 용액과 소수성 고분자 용액을 혼합하여 사용하는 경우, 두 고분자 용액의 구성비는 대체적으로 소수성 고분자 용액을 위주로 사용하고 전해질 용액을 소량 첨가하는 방식이 주로 이용된다. 이 경우 Fig 1에 도시된 바와 같이, 구성성분이 적은 이온전도성 고분자 전해질 촉매층은 분리된 상(Separate Phase)으로 존재하게 되며, 소수성 고분자촉매층이 연속상(Continuous Phase)으로 존재하게 된다⁶⁻⁷⁾.

이러한 구조를 갖는 촉매층은 상기한 소수성 고분자 용액만을 사용한 경우의 문제점을 그대로 내포하고 있으며, 부분적인 물의 응축으로 인하여 오히려 가스의 유로를 더욱 방해할 가능성도 있을 수 있다. 분리된 상으로 존재하는 전해질 층은 수소 이온을 전해질 막까지 전달할 확률이 매우 적으며, 막을 통과

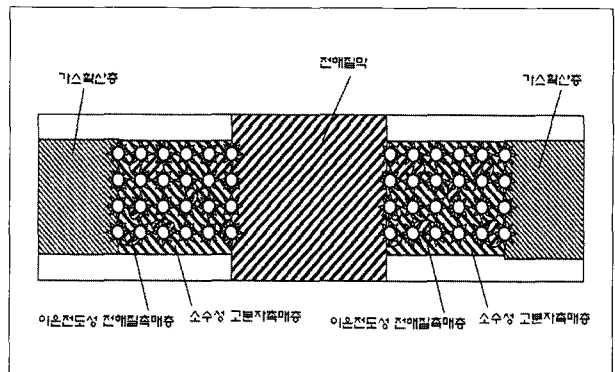


Fig. 1 MEA structure using ion conductive and Hydrophobic type

한 수소이온 역시 분리된 상으로 존재하는 공기극 측의 전해질 층으로 전달될 확률이 매우 적기 때문에 불필요한 삼상계면영역이라고 볼 수 있다.

2.2. 이중 촉매층의 형성

본 논문에 의한 막-전극 접합체의 구조는 Fig 2에 도시된 바와 같이, 산화환원 반응이 일어나는 촉매층의 구조가 소수성 고분자 촉매층과 이온전도성 고분자 촉매층의 두 층으로 구성되어 있으며, 특히 이 두 층 사이의 계면은 두 개의 빗살이 맞물려 있는 형태로 되어 있다. 또한 소수성 고분자 촉매층은 발수 처리된 가스확산층과 접하고 있고, 이온전도성 고분자 촉매층은 이온전도성 고분자 전해질 막의 양 면과 접하고 있다.

본 논문의 핵심을 이루고 있는 이중 촉매층의 제작에 있어서, 먼저 소수성 고분자 촉매층과 이온전도성 고분자 촉매층을

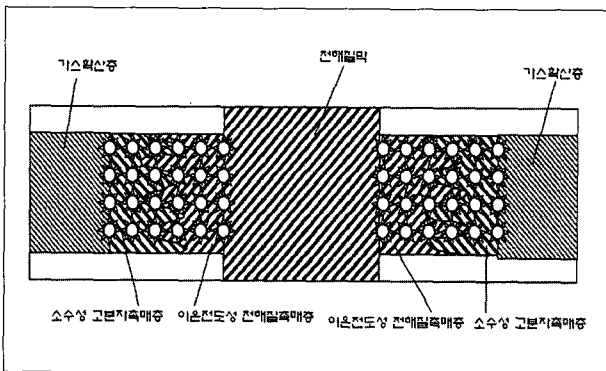


Fig. 2 MEA structure having the interfacial stripe

각각 제작한 후 이 둘을 열 압착의 방식으로 접합한다. 접합 후, 계면 상에 빗살이 맞물려 있는 구조를 형성하기 위하여 각 촉매층의 조성을 다음과 같이 한다. 소수성 고분자 촉매층의 조성은 이 촉매층이 건조된 후 담체를 포함한 촉매의 부피가 소수성 고분자 수지의 부피(%)의 4~5배가 되도록 하며, 이 촉매층의 공극율이 10~20% 부피가 되도록 한다. 이온전도성 고분자 촉매층의 조성은 이 촉매층이 건조된 후, 담체를 포함한 촉매의 부피가 이온전도성 고분자 수지의 부피와 같거나 약간 작게 되도록 하며 공극율은 무시한다. 이렇게 제조된 두 촉매층 간의 부피 비율은 비슷하게 되도록 한다. 건조된 두 촉매층 필름을 열 압착기를 이용하여 100~150℃의 온도에서 100~200

기압의 고압으로 30초 내지 1분 동안 접합한다.

이렇게 접합된 이중구조 촉매층은 소수성 고분자 촉매층과 이온전도성 고분자 촉매층이 빗살이 맞물려 있는 구조로 접합이 된다. 그 이유는 두 촉매층의 조성이 상기와 같이 다르기 때문에 경도의 차이가 생기게 되고, 더욱이 이온전도성 고분자 촉매층은 자체 내부의 경도차이가 특히 커 경도가 작은 부분이 뒤로 물러나게 되며, 이에 따라 다른 부분은 앞으로 나오게 되어 소수성 고분자 촉매층의 비교적 낮은 경도의 부분을 파고 들어가게 된다. 이 때 계면에서는 양 촉매층의 담체를 포함한 촉매 사이에 마찰 또는 압착이 일어나게 되고, 수지 부분을 밀어내거나 파괴시키며 접촉을 할 수도 있게 된다. 상기와 같이 제작된 이중 촉매층은 빗살 형태의 계면이 삼상계면영역의 역할을 하게 되는데, 이는 소수성 고분자 촉매층 이 계면의 모든 영역까지 연속상으로 연결되어 있어 가스의 유로를 확보하여 계면까지 가스를 원활하게 공급할 수 있다.

이렇게 제작된 막-전극 접합체는 Fig 2에 도시된 바와 같이 소수성 고분자 촉매층은 발수 처리된 가스확산층과 접하게 되고, 이온전도성 고분자 촉매층은 이온전도 고분자 전해질 막의 양 면과 접하게 된다. 따라서 이중구조 촉매층 내부에 있는 빗살 형태의 계면영역 이외의 계면들은 모두 같은 종류의 수지끼리 접하고 있어 낮은 압력조건에서 열 압착을 하여도 상분리가 일어나지 않기 때문에 계면에서의 저항이 높아질 염려가 없다. 낮은 압력조건에서 열 압착을 하여도 좋은 성능을 가진다는 것은 제조공정에서 연료극과 공기극 사이의 촉매층 간의 쇼트의 확률을 줄일 수 있다는 의미이다. 이는 앞서 기술한 이온전도성 고분자 촉매층에서 수지의 조성비율을 높여 막-전극의 압착시 쇼트의 확률을 줄이고자 하는 시도와 함께 이를 더욱 확고히 할 수 있는 것이다. 이중구조 촉매층 내부에 있는 빗살 형태의 계면영역은 소수성 고분자 촉매층과 이온전도성 고분자 촉매층의 접합으로 되어 있지만, 이는 앞서 기술한 바와 같이 고압의 조건에서 접합하게 되므로 접합면의 균일성을 확보할 수 있고, 이러한 고압의 접합은 상기한 바와 같이 전해질 막과는 별도의 공정에서 수행되기 때문에 아무런 지장이 없다. 만일 이중 수지간에 약간의 상분리가 존재한다고 하여도 담체를 포함한 촉매는 밀착되어 있으며, 이는 삼상계면영역의 가스 확산에 오히려 도움이 된다고도 볼 수 있다.

3. 단위전지 및 Stack의 제작 및 성능평가 절차

3.1. 이중 촉매 MEA의 제작

전극과 전해질 접합체인 MEA는 전기화학 반응이 일어나는 연료전지의 핵심요소로 전해질막의 열적 안정성이 고려된 온도와 전극과 막의 저항을 줄이기 위해 일정 압력에서 가열압착(Hot Pressing)을 한다. 가열 압착시 조건은 양면을 두 번 압착하였고, 상판온도는 134-140 °C, 하판온도는 147-150 °C로 유지한 상태에서 30초간 실행하였다. 일반적으로 Nafion이 150 °C 이상에서는 파괴되므로 유의하여 전극 접합체를 제조하였다. 연료전지의 MEA의 성능변수 중의 또 하나는 다소 미미하다고 하나 Membrane의 두께나 제조 단가와 밀접한 관련을 갖는 촉매층의 두께가 있다. 이는 MEA의 압축시에 반드시 고려되어야 하는 변수로서 본 연구에서는 Nafion 115(127 μ m) 이용하여 다양한 조건을 갖는 MEA를 Fig 3과 같이 제작하여 성능시험을 실시하였다. MEA의 두께는 Fig 4에서와 같이 Nafion115를 사용하였을 때 압축전의 127 μ m의 두께가 약 40 μ m 정도 압축

이 되며, 또 각 촉매층은 카본페이퍼의 두께를 포함하여 170 μ m의 두께를 갖는 Anode와 Cathode가 압축후 80 μ m 정도로 압축되었다. 그 중 약 10 μ m는 Fig 4와 같이 Membrane의 표면에 압착되면서 접착되는 두께를 제외하게 되면 80 μ m의 두께를 갖는 촉매층을 형성하게 된다.

여기서 촉매층 두께는 전산모사 결과에 따라 도출된 적정조건인 80 μ m 정도로 갖도록 균일하게 각각의 MEA를 제작하였다.

대면적 MEA의 크기는 200cm²로 제작하였고, 전극에서의 촉매 물질로는 탄소 담체(Vulcan XC-72R, Cabot)에 Pt가 20 wt% 담지된 Pt/C 분말(Johnson Matthey)을 사용하였다. 촉매 슬러리는 이소-프로판 알콜(IPA) 용매에 촉매를 넣고, 초음파 교반기를 사용하여 용매 내에 촉매를 균일하게 분산시키면서 여기에 Pt/C 무게 1/3량의 나피온 이오노머를 첨가하여 슬러리를 만들었다. 제조된 슬러리를 확산층 즉 탄소 종이 위에 스프레이 법을 사용하여 도포한 후, 이 촉매 층 표면에 Pt/C 무게의 1/3량의 나피온 이오노머를 도포함으로써 전극을 제조하였다. 이 때 Pt의 담지량은 초기에는 4 mg/cm²으로 많이 사용하였으나 담지된 Pt/C 촉매를 사용함으로써 Pt 함량을 일반적으로 Anode와 Cathode 각각 0.4 mg/cm²로 사용하고 있으나 본 실험에서는 Pt의 담지량은 촉매에 의한 전기를 생산하는 Cathode에는 0.4 mg/cm²을 사용하고 Anode측에는 0.25 mg/cm²를 사용하였다. Pt의 양은 Anode측에서 기존에 비하여 약 40배정도 절약하였다. 촉매 층과 촉매 층 표면에 포함되는 나피온 이오노머는 EW 1100을 기준으로 사용하면서 전극을 제조하였다. 제조된 전극을

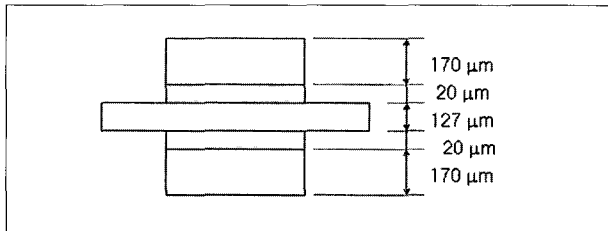


Fig. 3 Before hot pressing of MEA

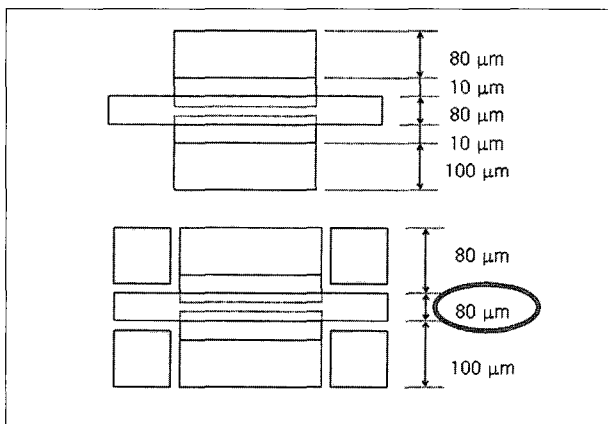


Fig. 4 After hot pressing of MEA

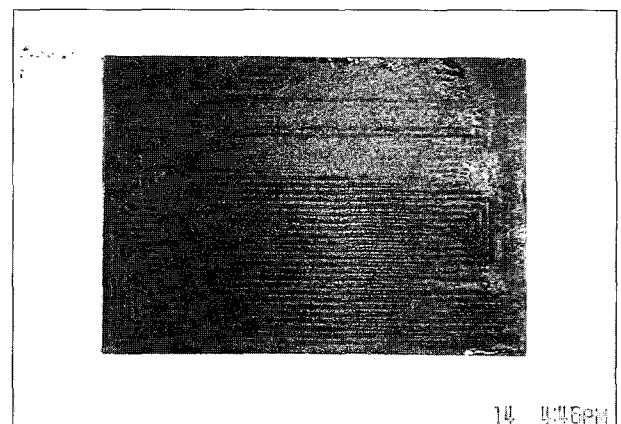


Fig. 5 Large capacity MEA for 200cm²

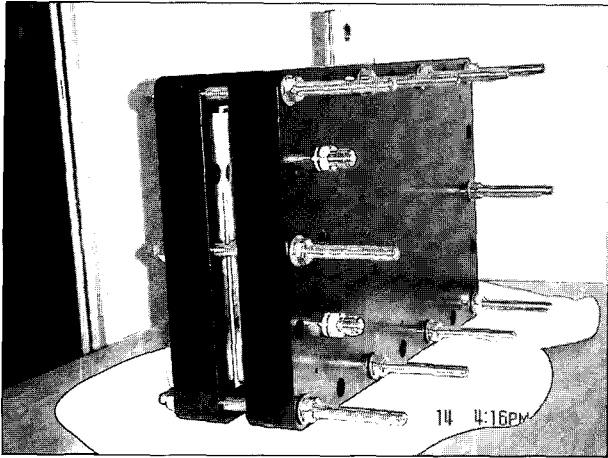


Fig. 6 Assembly of the single cell MEA

미리 전 처리된 나피온 고분자 전해질 막 양쪽에 놓은 후 130 °C, 400atm하에서 2분간 열간 압착하여 MEA를 제조하였다. 대면적은 잘 붙지 않기 때문에 열간 압착시간을 2분으로 늘려서 제작하였다. 그렇게 하면 나피온이 잘 붙는 대신 쇼트 될 가능성이 높다. Fig 5는 이중촉매로 제작된 대면적 MEA 이고, Fig 6은 Single Cell의 대면적 MEA를 제작한 모습이다.

3.2. MEA와 Stack의 제작 및 성능평가 절차

단위전지 및 Stack의 제작 및 성능평가를 위하여, 적합한 초기조건들을 설정하고 단위전지 작동모델을 도식하여 효율적인 작동에 필요한 변수들을 확보하고 작동조건을 도출하기 위한 유한요소모델을 생성하고 이중촉매 MEA를 제작하여 성능시험을 실시하였다. 이때, 결과가 상이하면 다시 초기조건을 다시 설정하여 성능시험을 반복하였다. 성능시험이 완료되고 나면 단위전지(200cm²) 성능평가 실시 후 Stack을 제작하고 성능평가를 실시하였다. Fig. 7은 실험절차 및 제작에 대한 흐름도이다.

시뮬레이션을 위한 유한요소모델에서 사용된 전극면적은 5cm²이고 운전온도는 70 °C (343K)이며, 수소 유량은 60sccm (Standard cubic centimeter per minute), 산소 유량은 40sccm으로서 대기압의 2배로 설정하여 공급하였다.

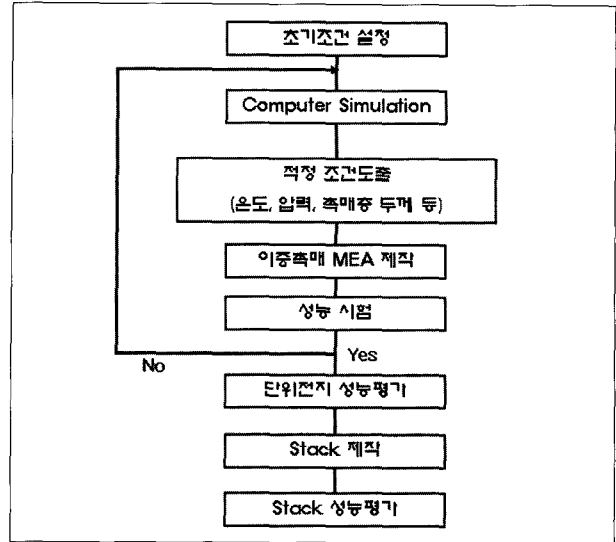


Fig. 7 Schematic flow chart of the MEA and Stack Performance Evaluation

4. 성능의 시뮬레이션 모델

연료전지의 성능시뮬레이션을 위하여 시뮬레이션 모델을 Fig. 8과 같이 선정하였고 요구되는 변수를 설정하여 전류평형식, 질량평형식, 모멘텀평형식의 3가지 평형식을 도입하여 연료전지의 내부의 거동을 시뮬레이션 하였다. 전위차 분포는 세 개의 하부영역으로 다음의 식 (1) ~ (3)과 같은 지배방정식을 기초로 하여 모델링을 하였다⁹⁾.

$$\nabla \cdot (-\kappa^{s,eff} \nabla \phi_s) = 0 \quad \text{at } \Omega_a \quad (1)$$

$$\nabla \cdot (-\kappa^{m,eff} \nabla \phi_m) = 0 \quad \text{at } \Omega_m \quad (2)$$

$$\nabla \cdot (-\kappa^{c,eff} \nabla \phi_c) = 0 \quad \text{at } \Omega_c \quad (3)$$

여기서 하첨자 a는 Anode, m은 Membrane, c는 Cathdode, s는 전극으로 표시하였고 κ^{eff} 는 유효전도도(S/m), 전극의 전위차는 ϕ_i 로 정의하였다. 전해질 막내에서 기체의 상태는 연속체로 간주하고 모멘텀 보존식은 Darcy's Law를 사용하여 표현할 수 있다. 투과성이 있는 물질에 Darcy's Law는 압력구배, 유체의 점도, 투과성 물질은 속도 벡터를 결정하는

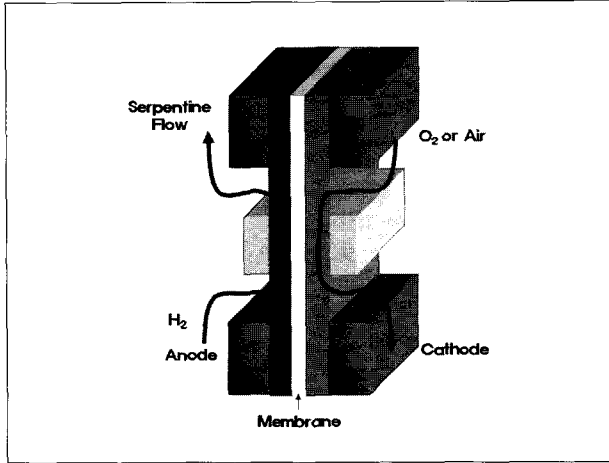


Fig. 8 Schematic of flow direction for analysis in the proposed model

데 유용하며, 아래의 식 (4)와 같이 표현할 수 있다. 여기서 κ_p 는 전극의 투과도(m²), η 는 기체의 점도(kg/ms), ∇p 는 압력구배(Pa)를 나타낸다.

$$u = -\frac{\kappa_p}{\eta} \nabla p \quad (4)$$

또 Maxwell-Stefan 확산 및 대류방정식은 Anode와 Cathode에 각각 적용하였고, Anode에서는 H₂, H₂O와 Cathode에서는 O₂, H₂O를 각각 고려하여 적용하였다.

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho \omega_i + \left[-\rho \omega_i \sum_j D_{ij} \nabla_j A + \omega_i \rho u + D_i^T \frac{\nabla T}{T} \right] = R_i \quad (5)$$

여기서

$$A = \left(\frac{M}{M_{ij}} \left\{ \nabla \omega_j + \omega_j \frac{\nabla M}{M} \right\} + (x_j - \omega_j) \frac{\nabla p}{p} \right)$$

T 는 온도(K), u 는 기체의 유속(m/s), x 는 몰분율, w 는 질량분율, M 는 분자량(kg/mol), D_{ij} 는 확산계수(m²/s), p 는 기체의 입·출구 압력(Pa), ρ 는 밀도(kg/m³)이다. 실험상에서 사용된 실제 연료전지의 형상을 기초로 하여 모델을 생성하였다. 모델은 S형 채널 형상을 반복하는 단위전지이며, 전극의 높이는 2mm, 전극의 폭은 0.4mm, 막의 두께는 0.1mm이고 전류집전자의 높이는 0.1mm이다. 경계조건은 선형의 물성치를 기본으로 하여 입력하였고 Anode와 Membrane 사이의 경계에서

는 전류밀도에 대한 경계조건은 다음의 식 (6) ~ (11)과 같다.

$$(-\kappa^{s,eff} \nabla \Phi_s) \cdot n = -i_a \quad (6)$$

$$i_a = -K_1 (c_{H_2}^{agg} - c_{H_2}^{ref} \exp(-K_2(\Phi_s - \Phi_m - \Delta\Phi_{eq,a}))) \times (1 - K_3 \coth K_3) \quad (7)$$

$$K_1 = \frac{6\delta_l(1-\epsilon)FD_{H_2}^{agg}}{(R^{agg})^2} \quad (8)$$

$$K_2 = \frac{2F}{RT} \quad (9)$$

$$K_3 = \sqrt{\frac{i_{0,a}S}{2F c_{H_2}^{ref} D_{H_2}^{agg}}} R^{agg} \quad (10)$$

$$c_{H_2}^{agg} = \frac{P_{H_2} y_{H_2}}{H_{H_2}} \quad (11)$$

위 경계조건에서 c^{agg} 는 전체 전극표면에서 용해된 기체 농도(mol/m³), c^{ref} 는 임의 상태에서의 용해된 기체 농도(mol/m³), $\Delta\Phi_{eq}$ 는 평형조건에서 전극과 고분자 막사이의 전위차를 나타낸다. 또한 δ_l 은 전극의 활성 촉매층의 두께, ϵ 은 전극의 공극여부, F 는 패러데이상수(As/mole), D^{agg} 는 전체 반응에서 용해된 기체의 확산 계수(m²/s), R^{agg} 는 전체 반경, $i_{0,a}$ 은 교환전류 밀도(A/m²), S 는 전극의 비표면적(m²/m³)을 나타낸다. 그리고 Cathode와 Membrane 사이(Line Number 13)의 경계에서는 전류밀도에 대한 경계조건은 다음의 식 (12) ~ (17)과 같다.

$$(-\kappa^{s,eff} \nabla \Phi_s) \cdot n = -i_c \quad (12)$$

$$i_c = K_4 c_O^{agg} (1 - \sqrt{K_5 \exp(-K_6(\Phi_s - \Phi_m - \Phi_{eq}^c))}) \times \coth \sqrt{K_5 \exp(-K_6(\Phi_s - \Phi_m - \Phi_{eq}^c))} \quad (13)$$

$$K_4 = \frac{12\delta_l(1-\epsilon)FD_O^{agg}}{(R^{agg})^2} \quad (14)$$

$$K_5 = \frac{i_{o,c} S (R^{agg})^2}{4 F c_O^{ref} D_O^{agg}} \quad (15)$$

$$K_6 = \frac{0.5 F}{RT} \quad (16)$$

$$c_O^{agg} = \frac{p_{O_2} y_{O_2}}{H_{O_2}} \quad (17)$$

5. 결과 및 고찰

5.1. 성능 시뮬레이션 결과

Fig. 9는 해석결과에서 압력구배형상을 보이고 있는데 여기서 Anode와 Cathode 각 입구측에서 강하게 나타나는 것은 조절된 압력에 해당하는 기체가 주입되는 상태이므로 당연한 결과라고 판단된다. Fig. 10은 전류밀도분포를 나타내고 있으며, 연료 및 공기(산소)의 입출구 부분에서는 전류밀도가 낮은 것이 확인되고 있으며 전극의 중심쪽에서 전류가 가장 많이 발생하는 것을 확인할 수 있었다.

Fig. 11은 촉매층의 두께 변화에 따른 V-i 성능곡선을 압력 변화에 따라 도출한 것으로서 그림에서 보이는 바와 같이 촉매층의 두께가 두꺼울수록 성능이 향상되는 것으로 나타났다. 촉매층의 두께는 두꺼울수록 좋으나 다만 생산단가의 절감을

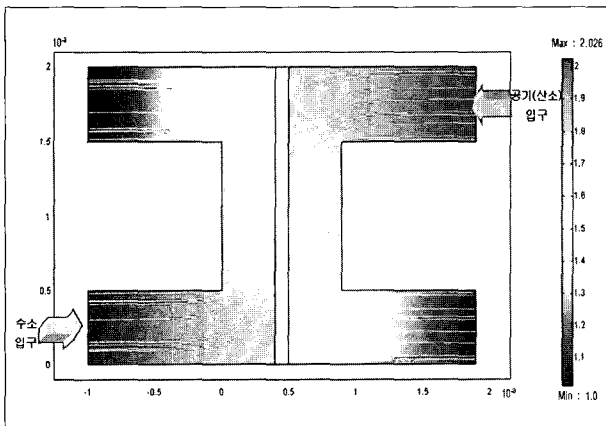


Fig. 9 Pressure gradient of inlet & outlet in PEMFC

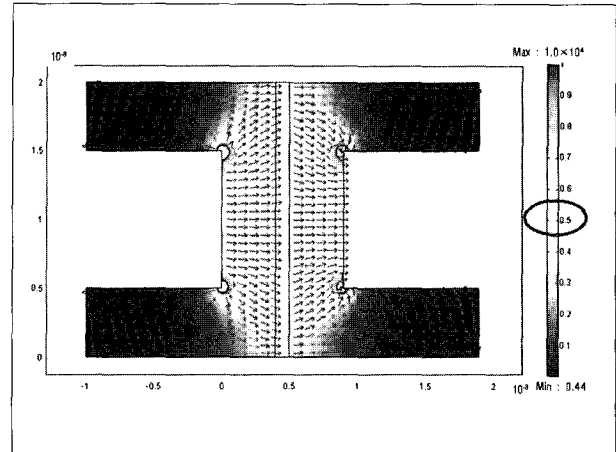


Fig. 10 Current density distribution in unit cell model

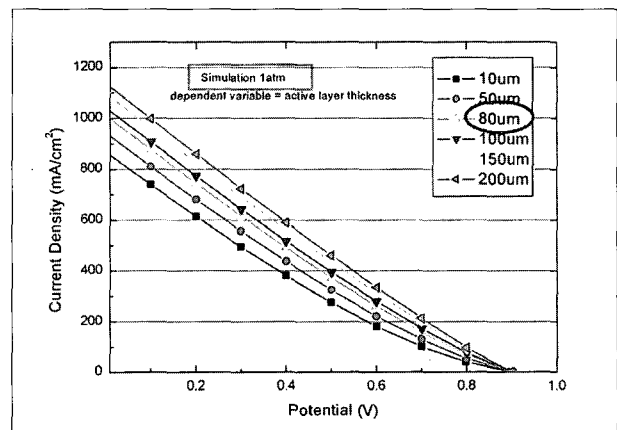


Fig. 11 V-I characteristics of electrodes under active layer thickness change

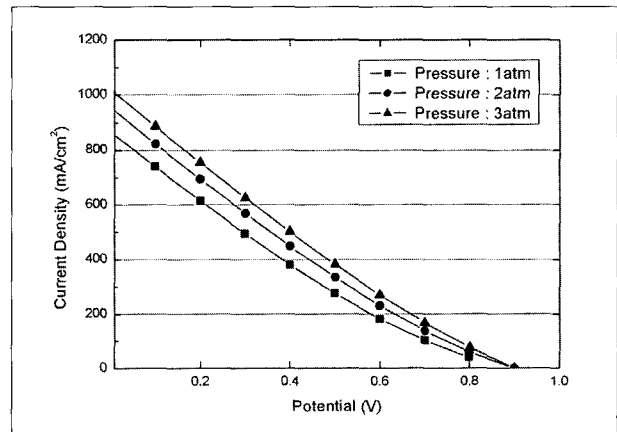


Fig. 12 V-I characteristics of electrode under the pressure change

위하여 본 연구에서는 촉매층의 두께를 80 μ m로 고정하여 시뮬레이션과 실험을 수행하였다. 압력변화에 따른 시뮬레이션 결과는 Fig. 12에서 보이는 바와 같이 압력의 증가에 따라 연료전지의 성능곡선이 향상되는 것을 보일 수 있는데 본 실험에서는 1-3atm까지 연료의 압력을 높여가며 실험을 수행하였다. 압력이 높아지면 성능이 증가하는 것을 볼 수 있다. 하지만 3atm 이상의 압력은 반응량에 비해 소모되는 양의 과다로 인해 부적절하다고 판단된다.

5.2. 대면적 MEA 및 Stack 성능평가

대면적 MEA 및 스택(Stack)의 성능실험은 연료전지자동차에 연료전지를 탑재하여 운전하였을 때 가장 큰 영향을 주는 조건에 대하여 성능실험을 하였다. 연료전지를 대면적 MEA, 대면적 Stack을 제작하고 그에 대한 성능실험을 하였다. 방법은 H₂/O₂/Air의 압력조건을 1기압을 기준으로 하여 압력 변화에 따른 연료전지의 성능 변화를 측정하였다. 특히 공기를 사용할 경우는 압력을 더 올려서 실험하였으며 그에 대한 V-I 및 V-P 성능곡선을 도출하였다. 대면적 MEA는 촉매공정 중에 발생하는 물로 충분히 가습효과를 주기 때문에 별도의 가습장치 없이 성능실험을 하였다. 연료전지자동차에 사용되는 대면적 단위전지는 가능하면 주변장치를 적게 하여 경량화 함으로써 자동차의 출력을 높일 수 있기 때문에 주변장치는 실험에서는 적게 사용하였다. 또한 물이 상당히 많이 배출되기 때문에 대면적 단위전지에서는 가습장치 없이 자기 가습형으로 실험하였다. 가스의 온도가 일정하게 될 때까지 바이패스 시켜서 공급하였으며 스택의 온도 상승은 연료전지 자체의 발열과 냉각수를 가열하는 방법으로 하였다. 스택의 온도가 상승하면 일정유량의 수소와 산소를 공급한 후 전류의 변화에 따른 스택의 전위를 측정하였다. 연료전지의 성능은 측정 전의 작동 조건에 영향을 받는다. 특히 전해질막과 전극의 수분 변화가 주요한 원인이 된다. 스택의 가습조건 변화 실험은 연료전지 작동 정지 12시간 후에 재가동하여 실험하였다. 연료전지의 작동 전과 작동 후에는 잔류하는 수소와 산소를 제거하기 위해 질소를 공급하여 퍼지하였다.

Fig. 13과 14는 Cathode에 각각 산소와 공기를 주입하였을 경우의 V-I 성능곡선, Power 곡선을 나타낸다.

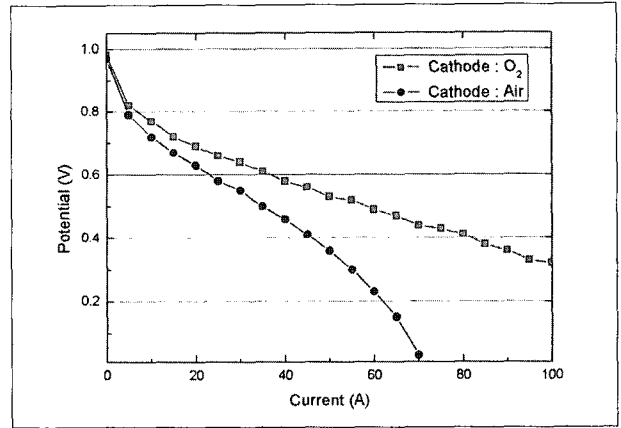


Fig. 13 V-I performance when provided O₂ and air as an oxidant for single cell

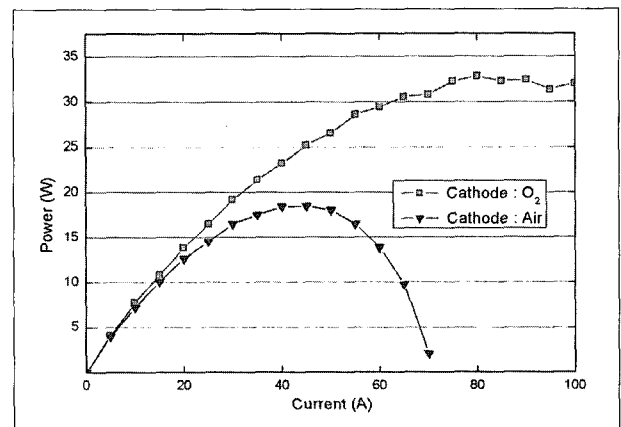


Fig. 14 Power curve when provided O₂ or air as an oxidant(1 cell)

여기서 소면적의 단위연료전지 실험 결과에서도 알 수 있듯이 환원부에 공기보다는 산소를 주입할 때 더 나은 성능을 얻을 수 있음을 확인하였다.

Fig. 15와 16은 10 Cells로 Stack을 제작 후의 V-I 성능곡선과 Power 곡선을 보여주고 있는데 셀 전압이 6V에서 80A 이상의 전류를 출력하는 것을 보이고 있으며 이때의 전력은 약 500W로서 300W 이상을 출력을 내는데 문제가 없는 것으로 판단되었다.

Fig. 17은 OCV(Open Circuit Voltage) 상태에서 부하(Load)를 5A일 때, 각각의 Cell의 OCV에는 영향을 미치지 않는다. 하지만 50, 100Amp에서는 Cell간 OCV에는 편차가 약 0.1V 발행하는 것을 알 수 있다. 특히 100Amp에서 6과 9 Cell

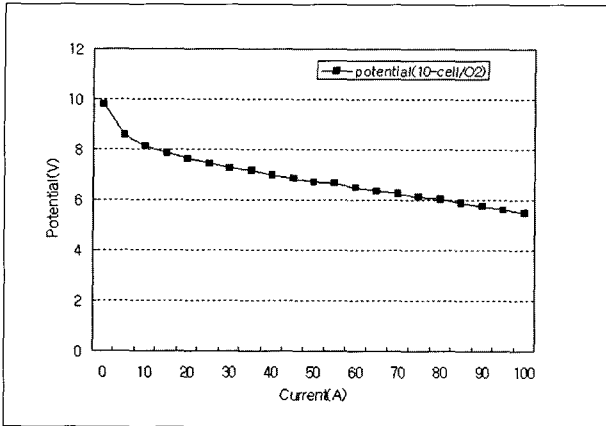


Fig. 15 V-I performance when provided O₂ as an oxidant(10 cells: stack)

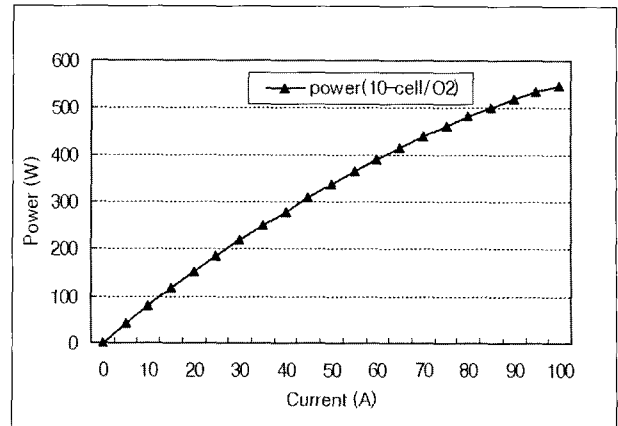


Fig. 16 Power curve when provided O₂ as an oxidant (10 cells: stack)

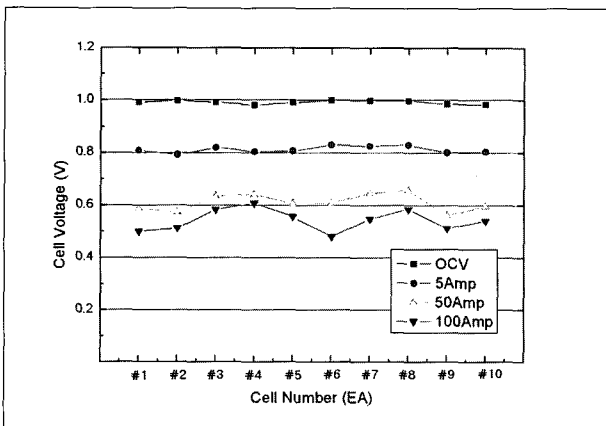


Fig. 17 OCV performance when provided load (10 cells: stack)

에서 다른 Cell과 비교하여 성능이 약간 떨어지는 것을 확인하였다.

6. 결론

본 논문에서는 연료전지자동차 시스템 설계와 동력원으로 사용되는 성능모사를 통하여 연료전지의 제작 및 실험에 앞서 성능향상 방안을 분석 및 도출하였다. 또한 성능모사를 통한 이론적 배경을 근거로 대면적(200cm²) 단위전지를 제작하고 단위전지의 신뢰성 및 성능향상을 위한 V-I 및 V-P 성능곡선

을 작성하였다. 또한, 기존의 소수성이나 이온전도성을 갖는 촉매층을 개선하여 계면이 빗살형태를 갖는 이중 촉매층 MEA 모델을 제시하였다. 촉매층의 두께가 두꺼울수록 연료전지의 성능이 향상되는 것으로 나타났다. 이와 같은 연료전지 시뮬레이션 결과로 촉매층의 두께는 두꺼울수록 좋으나 다만 생산단가의 절감을 위하여 본 연구에서는 촉매층의 두께를 80 μ m로 하는 것이 좋다고 판단되었다.

연료전지자동차에 탑재하여 운행할 수 있는 대면적 단위전지 10장으로 이루어진 스택을 제작하였으며, V-I 및 V-P 성능곡선을 도출한 결과 최대 500W 정도의 높은 출력을 갖는 Stack을 얻을 수 있었다.

References

- (1) Barbir, F.(USA), "Technical Challenges in PEM Fuel Cell Development. Proceedings of the 12th World Hydrogen Energy Conference Buenos Aires", Argentina 21-25. pp.1589- 1596, Vol. 2. pp.1717-1726, 1998.
- (2) Blomen, L. and Mugerwa, M. N., 1993, Fuel Cell Systems, Plenum Press
- (3) Jiang, R. and Chu D., "Stack Design and Performance of Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cells", Journal of Power Sources, Vol. 93, No. pp.1-2, 2001.

(4) Kim, H. G., Kim, Y. S., and Kim, H. Y., "Fundamental Study of System Design According to Load Characteristics in Small Fuel Cell Vehicle", KSMTE, Vol. 13, pp.75-80, 2004.

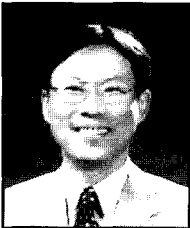
(5) Kim, H. G., Kim, Y. S., and Kim, H. Y., "Electric Voltage and Current Characteristics of Fuel Cell for Machine Tool Power Supply", KSMTE, Vol. 14, pp.1-7, 2005.

(6) Bernardi, D. M. and Verbrugge, M. W., "Mathematical Model of a Gas Diffusion Electrode Bonded to a Polymer Electrolyte", AIChE Journal, 37, pp.1151 - 1163, 1991.

(7) E. Hontanon, M.J. Escudero, C. Bautista, P.L. Garc-Yvarra and L. Daza, "Optimization of flow-field in polymer electrolyte membrane fuel cells using computational fluid dynamics techniques", Journal of Power Sources 86, pp.363~ 368, 2000.

(8) Kim, H. G., Kang Y. W. and Kim, Y. S., "Fundamental Study on Performance Analysis and Design of Fuel Cell Vehicle", Proceedings of the KSMTE Spring Conference 2004, pp.178-183, 2004.

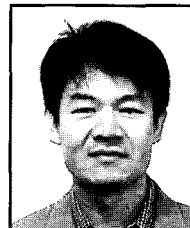
김 흥 건



1979년 한양대학교 기계공학과 공학사
 1984년 한양대학교 기계공학과 공학석사
 1992년 매사추세츠주립대(U. of Massachusetts) 기계공학과 공학박사

현재 전주대학교 기계자동차공학과 교수
 (E-Mail : hkim@jj.ac.kr)

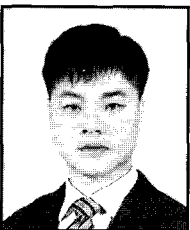
강 성 수



1998년 부산대학교 기계설계공학과 공학사
 2000년 동경대학교 환경해양공학과 공학석사
 2003년 동경대학교 환경해양공학과 공학박사

현재 전주대학교 공과대학 기계자동차공학과 전임강사
 (E-mail : sskang@jj.ac.kr)

곽 이 구



1999년 조선대학교 정밀기계공학과 공학사
 2001년 조선대학교 정밀기계공학과 공학석사
 2005년 조선대학교 정밀기계공학과 공학박사

현재 전주대학교 기계자동차공학과 전임강사
 (E-mail : kwac29@jj.ac.kr)

강 영 우



2002년 전주대학교 기계공학과 공학사
 2004년 전주대학교 기계공학과 공학석사

현재 전주대학교 메카트로닉스공학과 박사과정
 (E-mail : allrak@empal.com)