

<기술논문>

DOI:10.3795/KSME-B.2009.33.4.288

사행유로를 갖는 고분자연료전지내부에서 가스확산층을 통과하는 반응가스 우회유동에 대한 연구

조중원[†] · 안은진* · 이승보** · 윤영기* · 이원용*
(2007년 10월 16일 접수, 2008년 8월 6일 수정, 2009년 3월 2일 심사완료)

A Study on the Bypass Flow Penetrating Through a Gas Diffusion Layer in a PEM Fuel Cell with Serpentine Flow Channels

Choong-Won Cho, Eun-Jin Ahn, Seungbo Lee, Young-Gi Yoon and Won-Yong Lee

Key Words: PEMFC(고분자연료전지), Numerical Simulation(전산해석), Serpentine Channel(사행유로), Gas Diffusion Layer(가스확산층), Gas Permeability(가스투과도)

Abstract

A serpentine channel geometry often used in a fuel cell has a strong pressure gradient between adjacent channels in specific regions. The pressure gradient helps some amount of reactant gas penetrate through a gas diffusion layer(GDL). As a result, the overall serpentine flow structure is slightly different from the intention of a designer. The purpose of this paper is to examine the effect of serpentine flow structure on current density distribution. By using a commercial code, STAR-CD, a numerical simulation is performed to analyze the fuel cell with high aspect ratio of active area. To increase the accuracy of the numerical simulation, GDL permeabilities are measured with various compressive forces. Three-dimensional flow field and current density distribution are calculated. For the verification of the numerical simulation results, water condensation process in the cathode channel is observed through a transparent bipolar plate. The result of this study shows that the region of relatively low current density corresponds that of dropwise condensation in cathode channels.

기호설명

As : 비면적, m^{-1}
ASR : 면적비저항, $\Omega \cdot m^2$
I, j : 전류밀도, A/m^2 , A/m^3
K : 기체투과도, m^2
M : 분자량, kg/Mol
 \dot{m} : 질량속, kg/sec
 R_u : 기체상수, 8.314 J/mol·K

α : 순 전기삼투 계수×2, 무차원
 ϵ : 다공도, 무차원
 η : 과전압, V
 μ : 점성, $kg \cdot m/s$
 σ : 이온전도도, S/m

1. 서론

고분자 연료전지는 낮은 작동온도, 높은 출력 밀도, 빠른 시동 등 여러 장점을 갖고 있지만 상용화를 위해서는 해결해야 할 몇 가지 중요한 문제들이 있다. 이러한 문제들 중 가장 중요한 사항은 원활한 물배출로서 이를 위해 여러 가지 형태의 분리판 유로형태가 개발되었다. 개발된 대

† 책임저자, 회원, 한국에너지기술연구원
E-mail : cwcho74@naver.com
TEL : (042)860-3012 FAX : (042)860-3104
* 한국에너지기술연구원
** 한양대학교 기계공학과

표적인 분리판 유로형태에는 평행유로(parallel channel)와 단일사행유로(single-serpentine channel)가 있다. 평행유로는 다수의 직선유로들이 병렬로 배열되어 있지만 단일사행유로는 반복적으로 구부러진 하나의 유로만으로 반응가스를 공급한다. 단일사행유로는 물배출 성능이 우수하다고 알려져 있는데,⁽¹⁾ 그 이유는 반응가스가 하나의 유로만을 통과하기 때문에 상대적으로 높은 유속을 유지하게 되며, 결과적으로 기체가 갖고 있는 모멘텀이 증가하여 채널내부에 응축된 액적을 손쉽게 배출할 수 있기 때문이다. 그러나 단일유로를 사용할 경우 유로의 길이가 매우 길어지기 때문에 입출구의 압력손실이 필요 이상으로 커지며 유로의 격임부가 증가하여 액적이 쌓이는 재순환 영역이 빈번히 발생한다. 이 때문에 실제로는 평행유로와 사행유로의 특징을 혼합시킨 평행사행유로(parallel-serpentine channel)가 널리 사용된다. 평행사행유로는 다수의 사행유로를 병렬로 배열한 것으로 유로의 길이와 구부러진 횟수도 적절한 수준으로 줄일 수 있다.

일반적인 사행유로의 가장 큰 특징 중 하나는 인접한 유로 간에 큰 압력차가 발생한다는 점이다. 이러한 압력 차이는 반응가스의 상류와 하류가 매우 작은 차이를 두고 지나가는 곳에서 발생한다. 인접한 유로간의 강한 압력 차이는 Fig. 1과 같이 반응가스가 유로를 이탈하여 유로 위쪽에 놓여진 가스확산층(GDL)을 통과한 후 압력이 낮은 인접유로로 이동하게 하는 원인이 된다. Kanazaki⁽²⁾ 등은 이러한 압력차이로 인하여 상당한 량의 반응가스가 가스확산층(GDL)을 통과하여 인접유로로 흘러간다는 사실을 지적하며 이러한 GDL 우회유동이 국부적으로 반응가스를 촉매층에 더욱 쉽게 공급시켜 전류밀도를 증가시키고 GDL에 응축된 물을 제거하는데 도움을 준다고 주장하였다. 하지만 Kanazaki 등은 하나의 유로만을 가지는 단일 사행유로만을 고려하였다. 실제로 널리 사용되는 평행사행유로의 경우에는 독립적으로 공급되는 여러 개의 사행유로가 존재하기 때문에 앞서 언급한 GDL을 통한 우회유동이 연료전지의 성능에 끼치는 영향은 다른 형태를 가질 것이다. 이는 여러 개의 사행채널을 가지는 유로형태에서는 GDL우회유동이 Fig. 1에서와 같이 모든 유로에 영향을 주는 것이 아니라 특정유로에만 영향을 끼치기 때문이다. 따라서 우회유동이 발생한 유로의 인접지역은

높은 전류밀도를 발생시키지만 그렇지 못한 영역에서는 상대적으로 낮은 전류밀도만이 생성된다. 이는 GDL 우회유동으로 인하여 유로를 통한 반응가스의 공급에 편차가 발생하여 불균일한 전류밀도 분포가 발생하게 됨을 의미한다. 따라서 반응면적의 성능 불균일성이 연료전지의 성능과 수명에 큰 영향을 준다는 사실을 고려해보면, GDL 우회유동이 다중사행유로를 갖고 있는 연료전지 성능분포에 어떠한 영향을 줄 수 있는지 정성적으로 살펴보는 연구가 필요함을 알 수 있다.

연료전지의 내부 성능분포를 알아보기 위한 여러 시도가 있었지만 내부현상을 직접 관측하는 것은 매우 힘들기 때문에 CFD 기법이 많이 사용되고 있다. 특히 최근 들어 컴퓨터의 발전과 더불어 연료전지 해석을 위한 CFD 모형은 점차 복잡해지고 다양한 현상을 설명할 수 있도록 발전하고 있다.⁽³⁻⁷⁾ 연료전지의 특성을 파악하기 위해 투명분리판을 사용하여 내부 유동장을 직접 관찰하려는 연구도 활발히 진행되고 있다. Zhang등⁽⁸⁾은 평행유로를 갖는 연료전지의 공기측 유로에서 액적에 의한 유로막힘 현상을 관찰하였고, Spornjak 등⁽⁹⁾은 단일사행유로를 가지는 연료전지를 다양한 조건에서 운전시키면서 유로의 물배출 특성을 살펴보았다.

본 연구의 목적은 GDL 우회유동이 연료전지의 성능에 어떠한 영향을 줄 수 있는지를 수치적 및 실험적으로 분석하는 것이다. GDL로의 우회유동을 정확하게 예측하기 위해 GDL의 투과도를 직접 측정하여 이를 CFD 모형에 반영하였고, 또한 CFD 모형으로부터 얻어진 연료전지 성능분포의 특성을 검증해 보기 위해 투명셀을 제작하여 공기측 유로의 물배출 특성을 관찰하였다.

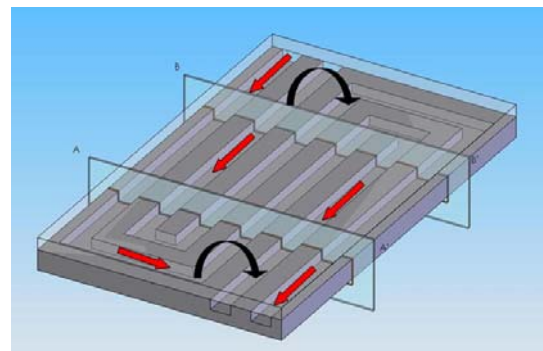


Fig. 1 Schematic of bipolar plate with a serpentine flow channel

2. 가스확산층의 물성치 측정

2.1 가스확산층의 물성치 측정장치

GDL의 투과도는 탄소섬유를 적층하는 방법에 따라 방향성을 갖기 때문에 실제 투과도 값은 GDL 평면에 평행한 방향(in-plane)과 수직인 방향(through plane)에 따라 크게 변한다. 본 연구에서 측정하고자 하는 Sigracet® SGL10BC는 탄소섬유가 무작위적으로 3차원 배열되어 상대적으로 약한 비등방성을 갖고 있으나 촉매층 접촉부에 다공도가 낮은 미세다공층(micro-porous layer)을 부착시켜 전체 투과도는 방향에 따라 매우 큰 차이를 보이게 된다.

본 연구의 목적은 GDL 평면과 평행한 방향으로 흐르는 GDL 우회유동의 분석을 목적으로 하기 때문에 Fig. 2와 같이 r 방향 투과도 측정 장치를 제작하여 물성치를 측정하였다. 투과도 측정을 위해 시편의 중앙에 질소를 주입하고 시편 중앙부압력과 외부압력의 차이를 측정하였고, 측정된 압력차와 GDL 두께로부터 투과도를 얻기 위해 Darcy 법칙으로부터 유도된 식 (1)을 사용하였다. 식 (1)에서 r_{out} , r_{in} , t_{GDL} 은 GDL 시편의 외경, 내경, 두께를 의미하며, p 는 압력, T 는 질소 기체의 온도이다.

$$K = \frac{\mu m}{p_{in}^2 - p_{out}^2} \frac{R_u T}{M} \frac{1}{\pi t_{GDL}} \ln(r_{out}/r_{in}) \quad (1)$$

실제 스택 체결시에는 GDL이 일정수준 이상의 높은 압력을 받기 때문에 하중을 증가시키며 기체내부압력과 두께변화를 동시에 측정하였다. 또한 GDL 시편이 갖고 있는 고유의 편차에 의해 발생

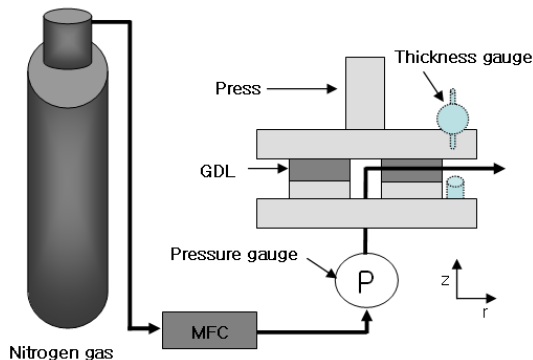


Fig. 2 Schematic of in-plane permeability and thickness measurement

할 수 있는 오차를 줄이기 위하여 12개의 GDL시편으로부터 물성치를 측정한 후 평균치를 얻어내었다.

2.2 압력에 따른 가스확산층의 물성치 특성

투과도는 물질의 다공도와 공극의 연결성 등에 의해 결정된다. 특히 다공도는 유체가 지나갈 통로의 체적을 나타내는 값으로 GDL의 투과도와 기체의 확산에 가장 큰 영향을 끼치는 값이다. GDL이 압력을 받아 변형되었을 경우, 포아송비(Poisson's ratio)에 의한 부피변화가 매우 작다고 가정하면 하중에 따른 다공도 변화는 초기 다공도와 두께방향 변형율을 측정하여 얻을 수 있다. 식 (2)에서 변형이 없는 상태의 다공도는 제조사에서 제공하는 값을 사용하였다.⁽¹⁰⁾

$$\epsilon = \frac{\epsilon_0 - \Delta Vol / Vol_0}{1 - \Delta Vol / Vol_0} \approx \frac{\epsilon_0 - \Delta t / t_0}{1 - \Delta t / t_0} \quad (2)$$

GDL의 다공도를 알면 다공성 매질에서의 유효 확산계수를 추정할 수 있지만 GDL의 다공도는 GDL이 놓여진 위치에 따라 다른 값을 갖게 된다. 즉 연료전지 체결시에 분리판의 리브는 GDL을 강하게 누르기 때문에 리브 위쪽에 놓여진 GDL은 높은 압력을 받게 된다. 이에 반해 빈공간인 유로위쪽의 GDL은 상대적으로 매우 작은 압력만 받게 된다. 폐이퍼 구조의 GDL인 경우 유로부 GDL이 받는 압력은 리브의 10~20% 수준임이 알려져 있다.⁽¹¹⁾ 따라서 리브측 GDL이 받는 압력이 20bar 이며 유로측 GDL이 그 10%에 해당되는 압력을 받는다고 가정하면, Fig. 3으로부터 유로부 GDL의 다공도는 0.77, 리브측 GDL은 0.72임을 알 수 있다. 이 값을 다공성 매질의 유효확산계수를 추정하는 Bruggemann⁽¹²⁾ 보정식에 대입하면 리브영역의 유효확산계수는 유로영역보다 10% 가량 작은 값을 갖게 된다.

$$\frac{D_{rib}}{D_{ch}} = \left(\frac{\phi_{rib}}{\phi_{ch}} \right)^{1.5} = 0.9 \quad (3)$$

연료전지의 유동구조에 큰 영향을 주는 GDL의 투과도는 Fig. 4와 보듯이 체결압력에 따라 크게 감소하고 있음을 알 수 있다. 다공도 추정에서와 마찬가지로의 가정을 사용하면 리브 GDL의 투과도

는 유로부의 30% 수준에 불과하다. 측정된 투과도 값을 이용하면, 리브폭이 1mm 이고 인접한 두 유로간의 압력차이가 0.01bar 인 경우 이로 인해 발생하는 GDL의 내부유속은 0.2m/s 정도이다. GDL에서의 유속은 유로에서의 속도보다 매우 낮기는 하지만 GDL 우회유동이 발생하는 영역에서의 물질전달이 확산보다 대류의 지배를 받게 하기에는 충분한 속도이다. 따라서 물질전달이 방해 받는 리브 위쪽의 영역이라 할지라도 GDL 우회유동이 발생한다면 전류밀도의 감소가 그리 크지 않을 것이라 예상할 수 있다.

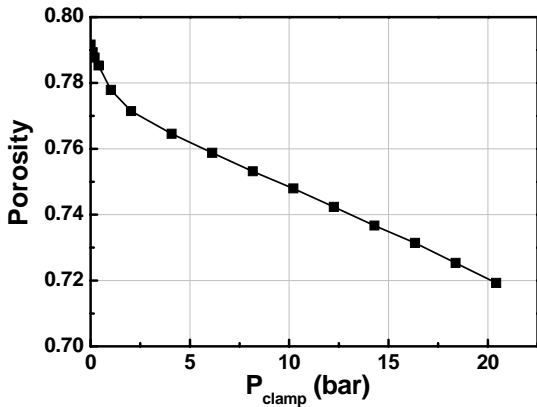


Fig. 3 Porosity variation as a function of clamping pressure

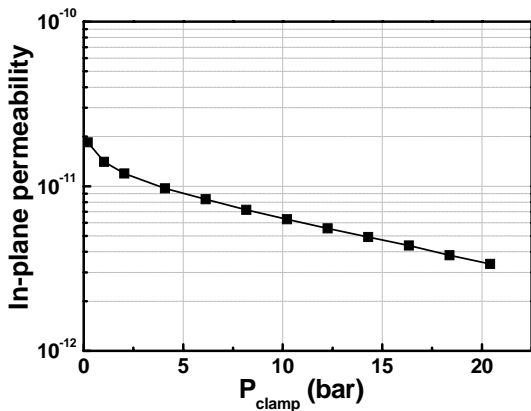


Fig. 4 In-plane permeability variation as a function of clamping pressure

3. 공기층 유로의 이상유동 관찰

연료전지 운전중 발생하는 공기층 유로의 이상유동(two-phase)을 관찰하기 위하여 Fig. 5와 같은 공기층 유로 가시화시스템(visualization system)을 제작하였다. 연료전지의 공기극에는 금도금 된 SUS를 투명한 폴리카보네이트에 부착시켜 유로의 액적 분포를 관찰할 수 있도록 하였다. 투명셀에 사용된 전해질막의 두께는 18 μm 이며, 부착된 촉매의 양은 0.4 Pt mg/cm² 이다. 또한 가스 확산층은 MPL이 부착된 Sigracet[®] SGL10BC를 사용하였다. 연료극과 공기극의 유로는 2개의 사행유로로 구성되어 있으며 연료와 공기가 같은 방향으로 흐르는 병류방식 (parallel flow)을 채택하였다. 투명셀의 작동조건을 조절하기 위하여 연료극쪽에 실리콘 가열판과 열전대를 부착하여 셀의 외부온도를 일정하게 유지할 수 있도록 하였다. 투명셀에 대한 자세한 작동조건과 형상은 Table 1에 정리되어 있다.

유로내의 이상유동을 확대 관찰하기 위하여 최고배율 160배가 가능한 광학현미경(KH-300)을 사용하였으며, 투명판에서의 반사를 최소화하기 위하여 편광어댑터를 달았다. 또한 Image Partner 라는 영상처리 프로그램을 사용하여 최대 30 frames/s 의 속도로 정지사진 및 동영상 촬영을 가능하게 하였다.

Table 1 Operating conditions and dimensional parameters for the transparent cell and the numerical model

Operating voltage (V)	0.6
Anode /Cathode outlet pressure (atm)	1
Anode/Cathode wall temperature (°C)	70/65
Inlet gas temperature(°C)	70
Inlet gas relative humidity (%)	100
H2 utilization (%)	70
O2 utilization (%)	40
Active area (cm ²)	19.44
Aspect ratio	3.375
Catalyst layer thickness (μm)	15
Membrane thickness (μm)	18
Channel width (mm)	1
Rib width (mm)	1
Anode channel depth (mm)	0.4
Cathode channel depth (mm)	0.8

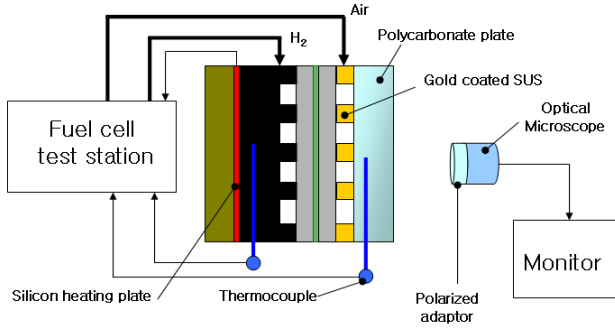


Fig. 5 Schematic of the transparent PEMFC

4. 연료전지의 전산해석

4.1 지배방정식

연료전지는 크게 반응가스 공급로 및 전자 이동로를 확보하기 위한 분리판 유로, 가스확산층, 촉매층, 고분자막으로 분리되며 각 영역별로 지배방정식의 형태가 약간씩 달라진다. 반응생성물인 물이 기체로만 존재한다고 가정한다면 각 영역에 따른 지배방정식의 형태는 Table 2, 3과 같다.

혼합기체의 조성이 변함에 따라 변하는 지배방정식의 물성치들을 반영하기 위하여 혼합기체의 밀도를 다음의 식으로 계산하였다.

$$\rho_{mix} = \frac{P}{R_u T} \left[\sum_{i=1}^N \left(\frac{Y_i}{M_i} \right) \right]^{-1} \quad (4)$$

또한 혼합기체의 점성은 각 기체의 점성과 물분율을 이용하여 추정하였다.⁽¹³⁾

$$\mu_{mix} = \frac{\sum_{i=1}^N x_i \mu_i}{\sum_{j=1}^N x_j \Phi_{ij}} \quad (5)$$

$$\Phi_{ij} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(1 + \frac{M_i}{M_j} \right)^{-\frac{1}{2}} \left[1 + \left(\frac{\mu_i}{\mu_j} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{M_j}{M_i} \right)^{\frac{1}{4}} \right]^2 \quad (6)$$

가스확산층에의 물질전달을 지배하는 질량확산계수는 두 가지의 화학종 사이에서 결정된다. 공기층은 질소, 산소, 물 등 두 종류 이상의 기체가 혼합되어 있기 때문에 정확한 계산을 위해서는 Stefan-Maxwell 방정식을 풀어야 한다. 하지만 질소는 반응에 참여하지 않기 때문에 산소와 물의

쌍에서 결정되는 질량확산계수가 연료전지 성능에 지배적인 영향을 가질 것이라 가정하여 공기극의 질량확산계수를 결정하였다.⁽¹³⁾

$$D_{ij} = \frac{3.64 \times 10^{-6.5}}{P} \left(\frac{T}{\sqrt{T_{c,i} T_{c,j}}} \right)^{2.334} \times (p_{c,i} p_{c,j})^{1/3} (T_{c,i} T_{c,j})^{5/12} \left(\frac{1}{M_i} + \frac{1}{M_j} \right)^{1/2} \quad (7)$$

위식으로부터 다공성 매질에서의 질량확산계수를 얻기 위해 Bruggemann 보정식을 사용하였다.

$$D_{ij}^{eff} = \epsilon^{1.5} D_{ij} \quad (8)$$

연료전지해석을 위한 유동의 지배방정식은 기존의 유체역학과 크게 다르지 않지만 전류밀도분포를 예측하기 위해서는 전압과 전류에 대한 관계식을 추가로 풀어주어야 한다. 연료전지의 운전전압이 가역전압과 촉매층의 활성화 과전압, 전해질막과 촉매층의 이온전도도에 의하여 결정된다고 가정하면

$$V_{cell} = E^T - \eta_{an} - \eta_{ca} - \int_0^{t_{cat}} j dz dASR_{cat} - ASR_{mem} I \quad (9)$$

$$E^T = E^0 + \frac{\Delta s_{rxn}^0}{2F} (T - T^0) \quad (10)$$

와 같이 운전전압을 표현할 수 있다. 위 식에서 촉매층의 활성화 과전압 η 는 Butler-Volmer 방정식의 변형으로부터 얻어진다.⁽⁷⁾

$$\eta_{an} = \frac{R_u T}{2F} \left(\frac{I}{I_{an}^0} \right) \left(\frac{P^0}{P_{H_2}} \right)^{1/2} \quad (11)$$

$$\eta_{ca} = \frac{R_u T}{F} \ln \left(\frac{I P^0}{I_{ca}^0 P_{O_2}} \right) \quad (12)$$

촉매층의 면적비저항 ASR_{cat} 은 연료극과 공기극의 면적비저항으로 구성되며, 각각의 면적비저항은 각 영역의 이온전도도 σ 에 의해서 결정된다.

$$ASR_{cat} = ASR_{an} + ASR_{ca} \quad (13)$$

$$ASR = \int_0^t \frac{dz}{\sigma^{eff}[\lambda(z)]} \quad (14)$$

Table 2 Single-phase non-isothermal PEMFC model : conservation equations in channel and GDL

	Channel	GDL
Mass	$\nabla \cdot (\rho_{mix} \vec{U}) = 0$	$\nabla \cdot (\rho_{mix} \vec{u}) = 0$
Momentum	$\nabla \cdot (\rho_{mix} \vec{U} \vec{U}) = -\nabla p + \nabla \cdot (\mu_{mix} \nabla \vec{U})$	$\nabla p + \frac{\mu_{mix}}{K} \vec{u} = 0$
Species	$\nabla \cdot (\rho_{mix} \vec{U} Y_i) = \nabla \cdot (D_{mix} \nabla Y_i)$	$\nabla \cdot (\rho_{mix} \vec{u} Y_i) = \nabla \cdot (D_{eff} \nabla Y_i)$
Energy	$(\rho C_p)_{mix} \nabla \cdot (\vec{U} T) = \nabla \cdot (k_{mix} \nabla T)$	$(\rho C_p)_{eff} \nabla \cdot (\vec{u} T) = \nabla \cdot (k_{eff} \nabla T)$

Table 3 Single-phase non-isothermal PEMFC model : conservation equations in catalyst layers

	Anodic catalyst layer	Cathodic catalyst layer
Mass	$\nabla \cdot (\rho_{mix} \vec{u}) = -\frac{IA_s}{2F} (M_{H_2} + \alpha M_{H_2O})$	$\nabla \cdot (\rho_{mix} \vec{u}) = \frac{IA_s}{2F} \left((1+\alpha)M_{H_2O} - \frac{1}{2}M_{O_2} \right)$
Momentum	$\nabla p + \frac{\mu_{mix}}{K} \vec{u} = 0$	$\nabla p + \frac{\mu_{mix}}{K} \vec{u} = 0$
Species	$\nabla \cdot (\rho_{mix} \vec{u} Y_{H_2}) = \nabla \cdot (D_{eff} \nabla Y_{H_2}) - \frac{IA_s}{2F} M_{H_2}$ $\nabla \cdot (\rho_{mix} \vec{u} Y_{H_2O}) = \nabla \cdot (D_{eff} \nabla Y_{H_2O}) - \frac{IA_s}{2F} \alpha M_{H_2O}$	$\nabla \cdot (\rho_{mix} \vec{u} Y_{H_2O}) = \nabla \cdot (D_{eff} \nabla Y_{H_2O}) + \frac{IA_s}{2F} (1+\alpha)M_{H_2O}$ $\nabla \cdot (\rho_{mix} \vec{u} Y_{O_2}) = \nabla \cdot (D_{eff} \nabla Y_{O_2}) - \frac{IA_s}{4F} M_{O_2}$ $Y_{H_2O} + Y_{O_2} + Y_{N_2} = 1$
Energy	$(\rho C_p)_{eff} \nabla \cdot (\vec{u} T) = \nabla \cdot (k_{eff} \nabla T) + IA_s \eta_{an}$	$(\rho C_p)_{eff} \nabla \cdot (\vec{u} T) = \nabla \cdot (k_{eff} \nabla T) + IA_s \left(\frac{T \Delta s_{rxn}}{2F} + \eta_{ca} \right) + I^2 ASR_{mem}$

$$\sigma = (0.5193\lambda - 0.326) \exp \left[1268 \left(\frac{1}{303} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (15)$$

촉매층의 유효이온전도도는 촉매가 함유하고 있는 이온노머량에 의해 결정되기 때문에 이온노머의 체적비를 사용한 Bruggemann 보정식을 사용하였다. 또한 Gore-select[®] 전해질막은 기계적 강도를 높이기 위한 부직포가 첨가되어 있어 이를 보정한 유효이온전도도를 사용해야 한다. 해석에 사용된 촉매층과 막의 성질은 table 4에 표기하였다.

$$\sigma_{cat}^{eff} = \epsilon_{ion}^{1.5} \sigma_{cat} \quad (16)$$

$$\sigma_{mem}^{eff} = f_{Gore} \sigma_{mem} \quad (17)$$

이온전도도를 결정하는 함수율 λ 는 대전된 $SO_3^- H^+$ 숫자에 대한 물분자 숫자의 비로 정의되며 이 값은 물의 활성화도(activity)에 의해서 결정된다.⁽¹⁴⁾

$$\lambda = 0.3 + 6a_w [1 - \tanh(a_w - 0.5)] + 3.9 \sqrt{a_w} \left[1 + \tanh \left(\frac{a_w - 0.89}{0.23} \right) \right] \quad (18)$$

Table 4 Physical parameter and properties of MEA for the numerical model

Membrane thickness (μm)	18
Catalytic layer thickness (μm)	15
Correction factor for Gore membrane	0.5
Volume fraction of ionomer in catalyst layer	0.25

전해질막의 비저항계산은 촉매층과는 다르게 좀더 복잡한 과정을 요구한다. 이는 전해질막의 이온전도도를 결정짓는 물이 전기삼투와 확산에 의해 지배받기 때문이다. 따라서 전해질막의 이온전도도를 계산하기 위해서는 다음과 같은 λ 의 방정식을 계산해야 한다.

$$\nabla \cdot (J_{H_2O}) = 0 \quad (19)$$

$$J_{H_2O} = -\frac{\rho_{dry}}{M_{mem}} D_\lambda \nabla \lambda + \frac{I}{F} \frac{2.5}{22} \lambda \quad (20)$$

이때 전해질막의 확산계수변화는 Motupally 등⁽¹⁵⁾이 제안한 식을 사용하였다.

$$D_\lambda = \begin{cases} 3.1 \times 10^{-7} \lambda (e^{0.28\lambda} - 1) e^{(-2346/T)} & \text{for } 0 < \lambda \leq 3 \\ 4.1 \times 710^{-8} \lambda (1 + 161e^{-\lambda}) e^{(-2346/T)} & \text{otherwise} \end{cases} \quad (21)$$

막에 수직인 방향으로만 물이 이동한다고 가정하면 식 (19)는 1차원 2계도 미분방정식이 되기 때문에 손쉽게 풀 수 있으며, 막을 통과하는 물의 양 또한 예측이 가능하다. 즉 반응에 참여한 수소분자에 대해 전해질막을 통과한 물분자의 비, α 를 다음과 같이 정의 할 수 있다.

$$\alpha = (2F/I) J_{H_2O} \quad (22)$$

4.2 격자계 및 경계조건

수치해석을 위한 격자계는 Fig. 6과 같은 직사각형 형태를 갖고 있으며 탄소분리판, 유로, 가스 확산층(GDL), 촉매층, 전해질막으로 구성되어 있어 분리판에서의 열전달과 촉매층에서의 전류밀도를 예측할 수 있도록 하였다. 수소측과 공기측의 반응가스는 같은 흐름방향을 갖는 평류방식(parallel flow)이며 각각 2개의 유로를 갖고 있다. 온도에 대한 경계조건은 수소측과 공기측에서 일정한 온도조건 $70^\circ\text{C}/65^\circ\text{C}$ 를 각각 사용하였다. 또한 작동전압은 0.5V 로 설정하였다.

GDL이 유로로 파고드는 효과를 반영하기 위하여 압력에 대한 GDL 두께변화자료를 이용하였다. 즉 유로측 GDL의 받는 압력에서의 두께와 리브측 GDL이 받는 압력에서의 두께차이만큼 GDL이 유로로 파고들었다고 가정하였다. 격자계의 형상과 경계조건은 투명셀의 경우와 같다.(Table 1)

3. 결과 및 토의

연료전지의 반응가스 흐름을 유추해 볼 수 있는 가장 좋은 정보는 연료전지 내부의 압력분포이다. 반응과 GDL 우회유동이 일어나지 않는다고 가정하면 층류유동의 지배방정식으로부터 공기측의 압력손실 $\Delta P=5.8\text{kPa}$ 임을 손쉽게 알 수 있다. 만일 공기측에서 반응이 일어난다면 소모된 산소분자 하나 당 물분자 두 개가 생성되기 때문에 압력손실은 이보다 좀 더 큰 값이 될 것

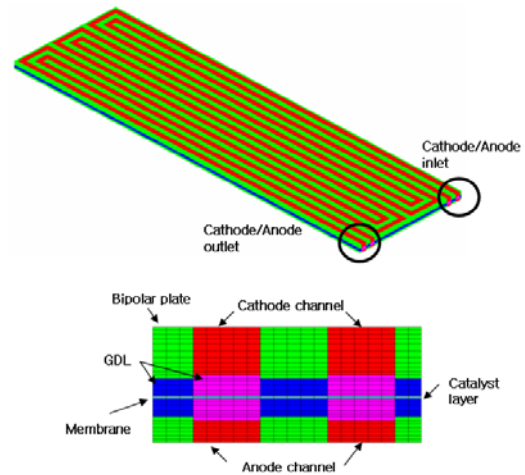


Fig. 6 Mesh configuration of numerical model with serpentine flow channels

이다. 하지만 실제 전산해석 결과인 Fig. 7은 압력손실 $\Delta P=5.1\text{kPa}$ 임을 알려주고 있다. 전산해석의 압력손실 결과는 반응과 GDL 우회유동이 존재하지 않았을 경우의 예측치보다 12% 작은 값을 가진다. 반응이 일어남에도 압력손실이 예측치보다 작은 이유는 유로를 제외하고도 반응가스가 흐를 수 있는 길이 존재하기 때문이다. 즉 유로 위쪽에 놓여진 GDL이 상당히 높은 수준의 다공도를 갖고 있다는 점을 고려한다면 반응가스가 GDL을 통하여 흐를 수 있다는 사실을 쉽게 추측할 수 있다. 실제 전산해석의 결과에서도 GDL 중앙에서의 반응가스 속도가 최고 0.2m/s 까지 증가함을 보여주고 있다. 이러한 GDL 우회유동은 인접한 유로들간의 압력차이로 발생하기 때문에 꺾임부의 최외각 유로에서 강하게 발생한다. 전산해석의 결과 GDL을 통과하는 유량은 전체 입력 유량의 약 13%로 이 차이만큼 압력손실이 예측치 보다 줄어들게 된다.

GDL 우회유동은 국부적으로 촉매층에 반응가스 공급을 증가시킨다. Fig. 9에서 보듯이 GDL 우회유동이 강하게 일어나는 리브영역의 산소농도는 주변보다 매우 높다. 특히 좌측 하단부 내부유로가 감싸고 있는 리브영역에서는 출구로 갈수록 오히려 산소농도가 증가하고 있다. 결과적으로 좌측하단부 리브영역의 산소농도 감소는 전류밀도의 저하를 야기시킨다. Fig. 11에서

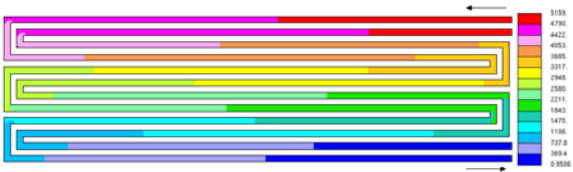


Fig. 7 Pressure contour in the cathode channels (Pa)

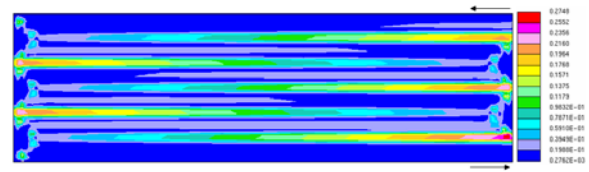


Fig. 8 Velocity magnitude distribution in the GDL center (m/s)

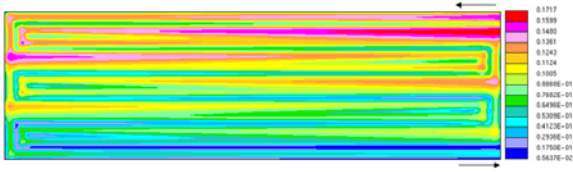


Fig. 9 Mass fraction of O₂ in the cathode GDL center

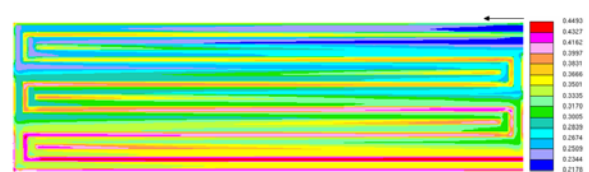


Fig. 10 Mass fraction of H₂O in the cathode GDL center

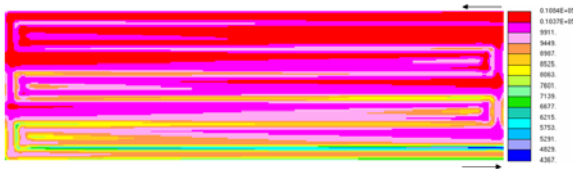


Fig. 11 Current density distribution (A/m²)

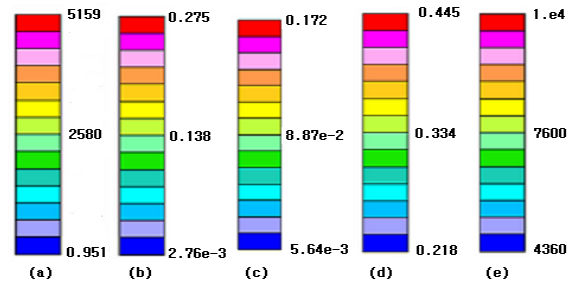


Fig. 12 Legends of contour plots in Fig. 7~10 : (a) pressure(Pa), (b) velocity(m/s), (c) O₂ mass fraction, (d) H₂O mass fraction, (e) current density (A/m²)

볼 수 있듯이 전류밀도 분포는 산소가 부족한 좌측하단부에서 만들어지는 삼각형 지역에서 매우 급격한 감소를 보이고 있다. 특히 좌측하단부의 리브는 유로부터 30% 작은 전류밀도 값을 보이고 있다.

공급가스의 부족은 전류밀도 분포뿐 아니라 유로내부의 액적생성에도 영향을 준다. 전산해석의 형상과 동일한 투명셀을 운전하였을 때 얻어진 공기극의 물 분포를 살펴보면 전류밀도 분포와 유사한 액적의 분포를 볼 수 있다.(Fig. 13, 14) 즉 셀 좌측 하단부의 삼각형 영역에서 많은 액적이 보이고 있음을 알 수 있다.

이러한 액적의 생성을 지배하는 인자들로써 열 전달과 반응가스의 속도 등이 있다. 투명셀의 모서리 부근에서 외부로의 열손실이 상대적으로 크기 때문에 액적의 생성에 영향을 줄 수 있겠지만 본 실험에서는 실리콘 가열판을 사용하여 그 효과를 최대한도로 줄일 수 있도록 노력하였고 Fig. 14에서 보듯이 투명셀의 안쪽유로에서도 동일한 액적 분포를 볼 수 있다는 점을 감안한다면 반응가스의 속도가 액적의 생성에 좀 더 큰 영향을 주고있는 것으로 생각된다. 또한 Spornjak 등⁽⁹⁾의 실험



Fig. 13 Cathode channel flooding at left bottom triangular zone @V_{cell}=0.5V, I_{ave}=0.91A/cm²

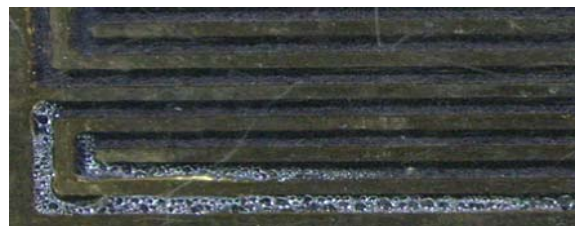


Fig. 14 Liquid water droplet in cathode channels (magnified image of Fig. 13)

에서도 이와 유사한 결과를 볼 수 있으며, 전산해석 결과인 Fig. 10, 11에서도 이와 유사한 분포를 얻을 수 있다. 이는 앞서 언급한 바와 같이 GDL 우회유동으로 인해 좌측하단부로 반응가스가 충분히 공급되지 못하기 때문이며 반응가스 공급의 부족은 그만큼 액적을 제거시킬 수 있는 기체의 모멘텀이 부족하다는 뜻으로 풀이 될 수 있기 때문이다. 결과적으로 GDL 우회유동으로 인한 전체 유동구조의 변화는 전류밀도 뿐 아니라 물배출에도 영향을 끼칠 수 있음을 알 수 있다.

4. 결 론

본 연구에서는 사행유로에서 발생하는 GDL 우회유동이 연료전지의 성능에 끼치는 영향을 살펴보기 위하여 두개의 사행유로를 갖는 연료전지의 전류밀도 분포를 수치적으로 분석하였다. 전산해석의 정확도를 높이기 위하여 압력에 따른 GDL의 투과도 및 두께 변화를 측정하여 해석에 적용하였다. 또한 전산해석의 결과를 정성적으로 검증하기 위해 투명셀을 통한 공기극 액적의 분포를 살펴보았다.

실험결과에 따르면 분리판에 의하여 하중을 받게 되는 리브측 GDL의 투과도 값은 유로측 GDL 투과도 값의 30%에 불과하지만 수치해석결과에 따르면 공기극 반응가스의 약 13%가 GDL을 통과하여 흐르고 있음을 알아내었다. GDL을 통한 우회유동은 국부적으로는 높은 전류밀도를 발생시킬 수 있으나 GDL 우회유동으로 인하여 반응가스를 제대로 공급받지 못하는 영역에서는 리브측 전류밀도가 유로측에 비해 30% 가량 낮아진다. 이러한 저전류밀도 영역은 반응면적의 좌측하단부에서 삼각형 형태로 나타나며 투명셀을 통해 관찰된 액적의 분포 또한 같은 형태를 갖고 있다. 따라서 사행유로의 경우 GDL 우회유동으로 인하여 발생한 반응가스 공급부족 영역의 출현은 전체 연료전지 성능을 감소시키는 주된 원인이 될 수 있다.

후 기

본 연구는 지식경제부의 지원을 받는 신재생에너지 기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다. (2005-N-FC12-P-01-30202007)

참고문헌

- (1) O'hayre, R. P., Cha, S., Colella, W. and Prinz, F. B., "Fuel Cell Fundamentals," John Wiley&Sons, New York, pp. 164~166.
- (2) Kanazaki, T., Li, X. and Baschuk, J., 2006, "Cross-leakage Flow between Adjacent Flow Channels in PEM Fuel Cells," *Journal of Power sources*, Vol. 162, pp. 415~425.
- (3) Shimpalee, S., and Dutta, S., 2000, "Numerical Prediction of Temperature Distribution in PEM Fuel Cells," *Numerical Heat Transfer, Part A*, Vol. 38, No. 2, pp. 111~128.
- (4) Um, S., Wang, C.-Y. and Chen, K. S., 2000, "Computational Fluid Dynamics Modeling of Proton Exchange Membrane Fuel Cells," *Journal of The Electrochemical Society*, Vol. 147, pp. 4485~4493.
- (5) Dutta, S., Shimpalee, S. and Zee, J. W., 2001, "Numerical Prediction of Mass-exchange between Cathode and Anode channels in a PEM Fuel Cell," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 44, pp. 2029~2042.
- (6) Ju, H., Wang, C.-Y., Cleghorn, S. and Beuscher, U., 2005, "Nonisothermal Modeling of Polymer Electrolyte Fuel Cells," *Journal of the Electrochemical Society*, Vol. 152, pp. A1645~A1653.
- (7) Ju, H., Meng, H. and Wang, C.-Y., 2005, "A single-phase, Non-isothermal Model for PEM Fuel Cells," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 48, pp. 1303~1315.
- (8) Zhang, F. Y., Yang, X. G. and Wang, C. Y., 2006, "Liquid Water Removal from a Polymer Electrolyte Fuel Cell," *Journal of the Electrochemical Society*, Vol. 153, pp. A225~A232.
- (9) Spornjak, D., Prasad, A. K. and Advani, S. G., 2007, "Experimental Investigation of Liquid Water Formation and Transport in a Transparent Single-serpentine PEM Fuel Cell," *Journal of Power sources*, Vol. 170, pp. 334~344.
- (10) SGL Group, http://www.sglcarbon.com/sgl_t/fuel

cell/pdf/Sigracet_GDL_10.pdf

- (11) Ihonen, J., Kikkola, M. and Lindbergh, G., 2004, "Flooding of Gas Diffusion Backing in PEFCs Physical and Electrochemical Characterization," *Journal of the Electrochemical Society*, Vol. 151, pp. A1152~A1161.
- (12) Rue, R. and Tobias, C. W., 1959, "On the Conductivity of Dispersions," *Journal of the Electrochemical Society*, Vol. 106, pp. 827~833.
- (13) O'Hayre, R., Cha, S., Colella, W. and Prinz, F., 2006, *FUEL CELL FUNDAMENTALS*, John Wiley & Sons, New York.
- (14) Wu, H., Berg, P. and Li, X., 2007, "Non-isothermal Transient Modeling of Water Transport in PEM Fuel Cells," *Journal of Power Sources*, Vol. 165, pp. 232~243.
- (15) Motupally, S., Becker, A. and Weidner, J. W., 2000, "Diffusion of Water in Nafion 115 Membranes," *Journal of the Electrochemical Society*, Vol. 147, pp. 3171~3177.