

URFC MEA 제작을 위한 분무법에 관한 수치 해석 연구

김승환¹ · 서원학¹ · 서영진² · 황철민³ · 이성희⁴ · 정영관^{2†}

¹국립금오공과대학교 일반대학원 기계공학과, ²국립금오공과대학교 기계공학과, ³포항테크노파크 그린에너지센터 수소팀, ⁴한국폴리텍대학 구미캠퍼스 자동화시스템과

A Numerical Study on the Spray Method for Manufacturing URFC MEA

SEUNGHWAN KIM¹, WONHAK SEO¹, YOUNGJIN SEO², CHULMIN HWANG³, SUNGHEE LEE⁴,
YOUNGGUAN JUNG^{2†}

¹Department of Mechanical Engineering, Kumoh National Institute of Technology Graduate School, 61 Daehak-ro, Gumi 39177, Korea

²Department of Mechanical Engineering, Kumoh National Institute of Technology, 61 Daehak-ro, Gumi 39177, Korea

³Phydrogen Team, Green Energy Center, ohang Technopark Foundation, 394 Jigok-ro, Nam-gu, Pohang 37668, Korea

⁴Department of Automation System, Gumi Campus of Korea Polytechnics, 84 Suchul-daero 3-gil, Gumi 39257, Korea

†Corresponding author :
jyg_kr@kumoh.ac.kr

Received 31 May, 2024

Revised 19 June, 2024

Accepted 24 June, 2024

Abstract >> The unitized regenerative fuel cell (URFC) is a method that can reduce costs and increase system simplification by unitizing a fuel cell system and a water electrolysis system. The spray method is suitable as the membrane electrode assembly (MEA) manufacturing method for URFC because it is easy to control the amount of catalyst, the size of the system is small, and economical manufacturing is possible. In this study, a numerical analysis of the effect of solution concentration on the spray method was performed to use it as basic data for the spray method to be used in MEA manufacturing. As result, as the Nafion solution concentration decreases it was found that the spray speed and the mass flow rate and the discrete phase model concentration increases and the spray range widens.

Key words : Unitized regenerative fuel cell(가역 연료전지), Membrane electrode assembly(막 전극 집합체), Fuel cell(연료전지), Water electrolysis(수전해), Numerical analysis(수치 해석), Concentration(농도), Range(범위), Length(길이)

1. 서론

지구온난화 문제를 해결하기 위하여 전 세계적으로 화석에너지에 대한 의존도를 낮추고 신재생에너지로의 에너지 전환을 위한 다양한 시도가 이루어지

고 있다. 그러나 신재생에너지원의 높은 비용으로 인한 경제성 문제가 걸림돌로 작용하여 보급에 어려움을 겪고 있다.

신재생에너지에 대한 높은 비용에 대한 대표적인 예로는 수소 생산과 수소 연료전지를 들 수 있다. 수

소에너지의 사용은 수소와 산소를 공급하여 전력을 생산하는 연료전지(fuel cell)와 물과 전기를 공급하여 수소를 생산하는 수전해(electrolysis) 장치를 각각 개별적으로 사용하고 있다. 그러나 연료전지와 수전해 장치는 내부에 고가의 재료를 포함하고 있어 장치의 가격이 높아 연료전지와 수전해 장치를 개별적으로 사용하는 것은 가격 및 장치 이용률에 있어 효율적이라 할 수 없다.

연료전지와 수전해 장치의 가격 저감과 장치 이용률을 높일 수 있는 방법으로 가역 연료전지(unitized regenerative fuel cell, URFC)가 있다. URFC는 수소의 활용(연료전지)과 수소의 생산(수전해) 기능을 복합 활용하는 장치로 하나의 셀(cell)로 두 가지 기능을 구현하기에 가격 저감과 장치 이용률을 획기적으로 개선할 수 있다¹⁾.

이러한 URFC는 고분자 전해질막 연료전지(polymer electrolyte membrane fuel cell, PEMFC)와 고분자 전해질막 수전해(polymer electrolyte membrane electrolysis cell, PEMEC)의 막 전극 집합체(membrane electrode assembly, MEA)가 핵심 부품으로 사용된다. MEA는 제작 방법에 따라 성능과 내구성 등에 많은 영향을 미친다²⁾.

MEA의 제작 방법은 데칼법(decals), 분무법(spray), 스퍼터링(sputtering) 등의 다양한 방법이 있다³⁾. 이 중 MEA 제작비용 감소와 공정 간소화를 위한 MEA 제작 방법으로는 분무법을 이용하는 것이다.

분무법은 MEA 제작에 있어 다양한 촉매량 조절이 쉽고 시스템의 크기가 비교적 작으며 단순하다는 장점이 있으나 대량 생산성이 낮고 균일한 촉매 분포를 가진 MEA 제작이 어려운 단점이 있다. 이러한 분무법의 단점이 보완된다면 URFC와 같이 다양한 촉매 조성이 필요한 다듬종 MEA 제작에 있어 타 제작 방법보다 우수한 제작 방법이 될 수 있다.

본 연구는 분무법을 이용한 URFC MEA 제작 시스템에 관한 연구로 수치 해석을 이용하여 분무법을 이용한 MEA 제작 방법에 관한 기초 자료로 사용하기 위해 수치 해석 연구를 수행하였다.

2. 연구 방법

URFC MEA 제작 시스템에 관한 연구 일환으로 수치 해석을 이용한 MEA 제작 방법에 관한 기초 자료를 얻기 위해 상용 ANSYS Fluent 프로그램(ANSYS, Canonsburg, PA, USA)을 이용하여 다음과 같은 수치 해석 연구를 수행하였다.

2.1 촉매 슬러리 농도가 분무에 미치는 영향에 대한 수치 해석 방법

2.1.1 수치 해석 기법

MEA를 제작하는 다양한 방법들은 촉매 슬러리를 사용한다는 공통점이 있다. 촉매 슬러리를 사용할 경우에 고려해야 할 중요한 인자로는 촉매 슬러리의 농도가 있으며 촉매 슬러리의 농도에 따라 제작되는 MEA의 신뢰성과 제조 방법이 조금씩 달라진다^{4,6)}.

특히 촉매 슬러리를 분무하여 MEA를 제작할 경우에는 촉매 슬러리의 농도에 따라 촉매층이 형성되는 균일도와 비산성이 변하게 된다.

촉매 슬러리 분무에 대한 수치 해석을 수행하기 위해 Reynolds averaged Navier-Stokes simulation (RANS) 방정식을 기반으로 난류 모델 κ - ϵ standard 모델을 적용하였으며 다상 유동 해석 기법으로 이산 위상 모델(discrete phase model, DPM)을 적용하였다. DPM은 Lagrangian 방법으로 입자의 궤적을 계산하는 입자 추적 모델로 가스상, 운동량, 에너지, 질량을 서로 교환할 수 있으나 개별 입자들 간의 영향력은 고려하지 않는다. 또한 DPM은 분무되는 입자가 구 형태만이라고 가정하며 질량 유량에 관계없이 입자의 체적 분율이 10% 미만일 경우 적용할 수 있는 모델이다^{7,9)}.

본 수치 해석 연구에서 사용되는 촉매 슬러리의 실제 분무되는 촉매는 매우 작은 입자이고 균일한 구 형태라 가정해 수치 해석을 수행하였으며 입자의 직경과 속도 등의 입자 해석 시에 요구되는 초기 조건을 명확히 알기 어려운 경우 DPM이 매우 적합한 해석 모델로 알려져 있다^{7,9)}.

2.1.2 수치 해석 모델

Fig. 1은 URFC MEA를 제작하기 위한 촉매 슬러리의 분무에 사용된 수치 해석 모델을 나타낸 것이다. A 입구와 B 분무면의 거리는 L 100 mm의 검사 체적(control volume)으로 설정하여 수치 해석을 수행하였다.

Table 1은 수치 해석에 사용된 나피온 용액(Nafion solution)의 물성을 나타낸 것이다. 나피온 용액은 본 실험실에서 사용하는 DuPont사(Wilmington, DE, USA)의 알코올 기반 EW1100, 5 wt.%인 D521의 물성을 사용하여 수치 해석을 수행하였다.

수치 해석을 이용하여 촉매 슬러리의 농도가 촉매 분무에 미치는 영향을 파악하기 위해 연료전지의 성능이 가장 높게 나타나는 Nafion 함량 25 wt.%를 촉매 슬러리의 기준 농도로 하였다⁴⁾.

나피온 함량 25 wt.%의 촉매 슬러리를 분무할 경우 촉매는 매우 미세한 입자 크기와 슬러리 제조 시에 나피온 용액에 비해 함량이 매우 적어 분무에 큰 영향을 미치지 못하기 때문에 본 수치 해석의 물성

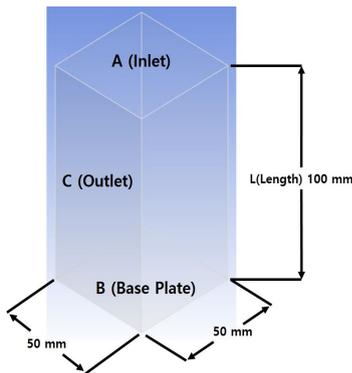


Fig. 1. The numerical analysis model (control volume) for spray method

Table 1. Properties of D521 Nafion solution

Property	D521
Polymer content (wt.%)	5.0
Density (kg/m ³)	930
Specific gravity	0.92 to 0.94
Viscosity (cP at 25°C and 40 sec ⁻¹ shear rate)	10 to 40

은 나피온 용액만을 사용하였다.

본 연구에서는 촉매 슬러리의 농도가 분무에 미치는 영향과 그에 따른 분무 경향을 수치 해석을 통해 파악한 후에 이 결과들을 MEA 제작 시스템에 활용하고자 한다.

3. 수치 해석 결과

3.1 촉매 슬러리 농도가 분무에 미치는 영향에 대한 수치 해석 결과

3.1.1 분무 실험과 수치 해석 비교

분무 시스템의 분무 노즐은 분무면인 B와 L 100 mm의 길이인 A면의 정중앙에 고정되어 있으며 노즐의 직경은 0.7 mm이다. 분무의 기본 특성을 파악하기 위해 직접 물을 분무하여 나타난 결과와 수치 해석을 비교하였으며 이를 기초로 나피온 용액과 나피온 용액의 농도를 50% 낮춘 재료를 이용하여 분무 수치 해석을 수행하였다.

분무 실험은 비례 제어를 통해 5 bar의 압력으로 1초 동안 유체를 분무하여 나타난 분무 범위를 Fig. 2와 같이 측정하였다.

Fig. 3은 분무 시에 분무 거리와 각도, 이론적인 분무 범위를 나타낸 것이다. 본 연구에서 사용된 분무 노즐은 분무면과 길이 L 100 mm 떨어진 위치에서 물을 분무하여 형성된 분무 범위 D_A는 약 25 mm, 노

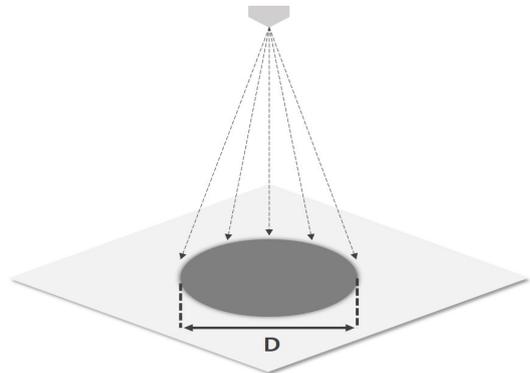


Fig. 2. The measurement range on the spray method experiment

즐에서 분무되는 각도(θ)는 약 15° 로 나타났다.

Fig. 4는 분무 실험 결과와 수치 해석 결과 그리고 이론 분무 범위를 비교한 것이다. 분무 실험, 수치 해

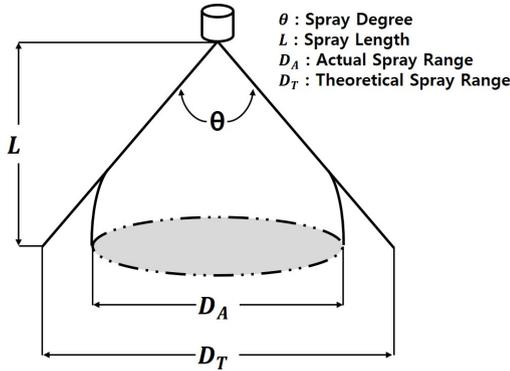


Fig. 3. The schematic diagram for spray range on spray length and angle

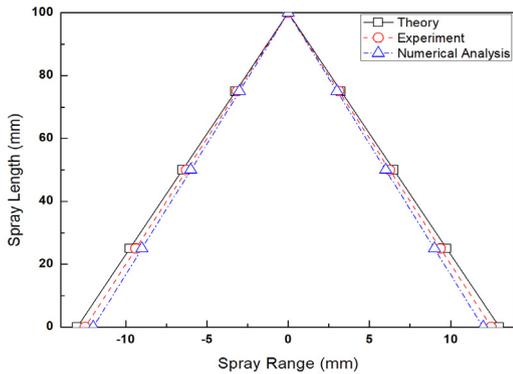


Fig. 4. The comparison of spray range between theory, experiment and numerical analysis

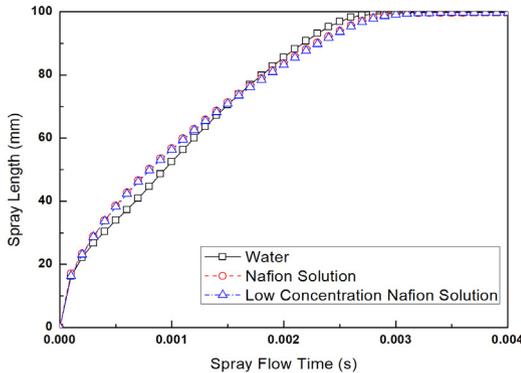


Fig. 5. The relation between spray flow time and spray length according to fluid concentration

석 및 이론 분무 범위는 각각 약 25, 24, 26 mm로 나타나 실험과 수치 해석, 이론 모두 유사한 결과가 나타남을 확인하였다.

3.1.2 농도에 따른 이동거리

Fig. 5는 물과 나피온 용액, 50% 농도를 낮춘 저농도 나피온 용액(low concentration Nafion solution) 재료가 동일한 시간 동안 100 mm로 이동하는 거리를 나타낸 것이다. 유동 시간 0.001초에서 농도가 가장 높은 나피온 용액은 물과 저농도 나피온 용액과 비교하여 각각 약 7.61%, 0.76% 빠르게 이동하였으며 노즐이 위치한 A 입구에서 B 분무면까지의 거리 L 100 mm에 도달하는 0.004초에서 또한 각각 약 0.058%, 0.051% 빠르게 이동하였다.

슬러리의 농도가 높을수록 분무된 유체의 이동거리가 빠른 것은 공기 저항에 의한 확산력보다 관성력이 높아 분무되어 이동하고자 하는 곳으로 빠르게 낙하하는 것으로 생각할 수 있다.

3.1.3 농도에 따른 분무 범위

Fig. 6은 동일한 시간 동안 물과 나피온 용액, 저농도 나피온 용액의 분무 범위를 나타낸 것이다. 유동 시간 0.0004초에서 물이 나피온 용액과 저농도 나피온 용액에 비해 각각 약 43.75%, 35.65% 넓은 분무 범위로 나타났으며 0.035초에서는 각각 약 8.60%, 10.37% 넓은 분무 범위로 나타났다.

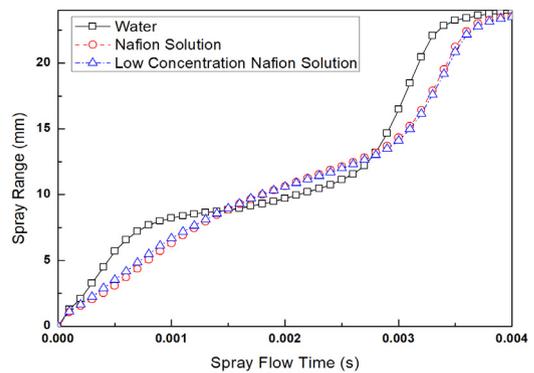


Fig. 6. The relation between spray flow time and spray range according to fluid concentration

슬러리의 농도가 낮을수록 분무된 유체의 분무 범위가 넓은 것은 확산하려는 관성력이 점성력보다 크기 때문에 분무되어 이동하는 동안 확산에 의한 분무 범위가 넓어지는 것으로 생각할 수 있다.

Fig. 7은 물과 나피온 용액, 저농도 나피온 용액의 L 100 mm까지 이동하는 동안의 분무 범위 변화를 나타낸 것으로 분무되는 형태의 경향을 확인할 수 있다. 물은 초기부터 확산하는 경향이 나타나며 물에 비해 농도가 높은 나피온 용액과 저농도 나피온 용액은 선형적으로 낙하하는 경향이 나타난다.

3.1.4 농도가 분무에 미치는 영향

Fig. 8은 동일한 시간 동안 물과 나피온 용액, 저농도 나피온 용액이 출구로 빠져나가는 질량유량을 나

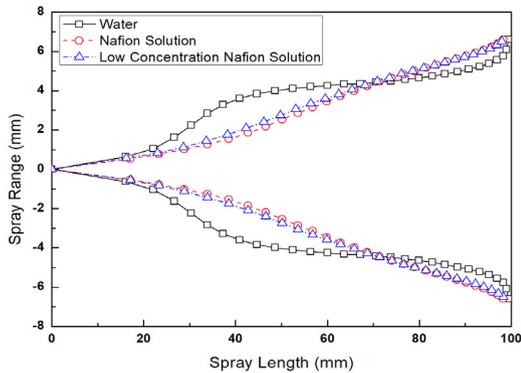


Fig. 7. The relation between spray length and spray range according to fluid concentration

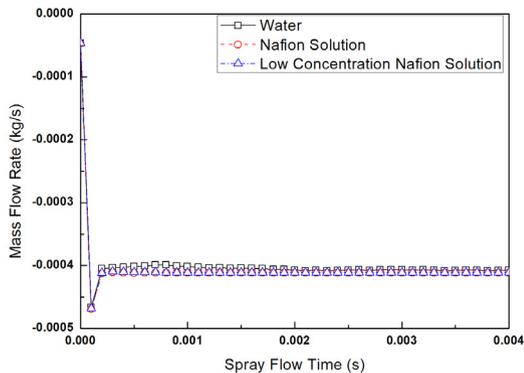


Fig. 8. The relation between spray flow time and mass flow rate according to fluid concentration

타낸 것이다. 유동 시간 0.0003초에서 물은 나피온 용액, 저농도 나피온 용액에 비해 각각 약 1.79%, 1.55% 더 많은 양이 출구로 빠져나갔으며 유동 시간이 0.0007초일 때 각각 약 3.10%, 3.01% 더 많은 양이 분무된다는 것을 확인하였다.

Fig. 9는 물과 나피온 용액, 저농도 나피온 용액이 분무되어 각각의 높이에서 나타나는 DPM 농도를 나타낸 것이다. 40 mm의 높이에서 물은 나피온 용액, 저농도 나피온 용액에 비해 각각 약 84.72%, 83.83% 높은 DPM 농도를 나타냈으며 100 mm에서는 각각 약 76.41%, 82.29% 높은 DPM 농도가 나타났다.

이는 MEA를 제작하는 과정에서 동일하게 분무해도 물에 비해 농도가 높은 나피온 용액과 저농도 나피온 용액은 충분한 촉매층 형성을 위해 더 많은 분무량이 필요하다는 것을 의미한다. 또한 분무 높이에 따라 충분한 촉매층 형성을 위한 분무량이 달라져야 한다는 것을 뜻한다.

본 수치 해석을 통해 MEA 제작 시스템을 구성할 때 분무 높이에 따른 분무 범위와 슬러리 농도에 따른 분무 범위를 확인할 수 있어 분무 높이와 슬러리 농도의 변화에 따른 분무 형태를 예측할 수 있다.

4. 결론

본 연구는 분무법을 이용한 URFC MEA 제작 시스템에 관한 연구로 촉매 슬러리의 농도가 분무에

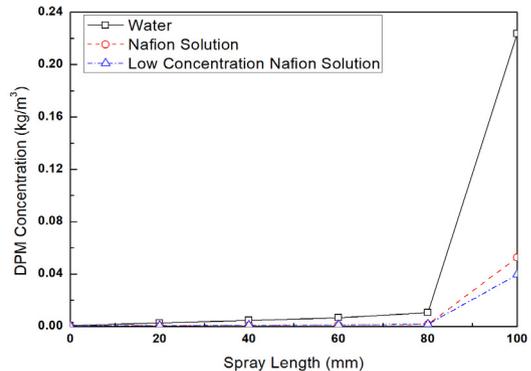


Fig. 9. The relation between spray length and discrete phase model concentration according to fluid concentration

미치는 영향과 그에 따른 분무 경향을 수치 해석을 통해 파악하여 이를 MEA 제작 시스템에 활용하고자 수치 해석 연구를 수행하였다.

1) 본 연구에 사용되는 분무의 기본 특성을 파악하기 위해 분무 실험을 수행하여 이론, 분무 실험, 수치 해석을 비교한 결과 분무 범위가 각각 약 26, 25, 24 mm로 유사한 결과가 나타남을 확인하였다.

2) 수치 해석을 통해 농도에 따른 유체 이동거리를 확인한 결과 농도가 높은 나피온 용액, 저농도 나피온 용액, 물의 순서로 빠르게 이동한 것을 확인하였다.

3) 농도에 따른 분무 범위는 물, 저농도 나피온 용액, 나피온 용액 순서로 농도가 높을수록 넓은 범위에 분무된 것을 확인하였다.

4) 물과 나피온 용액, 저농도 나피온 용액의 분무 이동거리에 따른 분무 범위의 변화를 확인한 결과 물은 초기부터 확산하는 경향이 나타나며 물에 비해 농도가 높은 나피온 용액과 저농도 나피온 용액은 선형적으로 낙하하는 경향이 나타난 것을 확인하였다.

5) 유동 시간에 따른 출구로 빠져나가는 질량유량은 농도가 낮은 물, 나피온 용액, 저농도 나피온 용액 순으로 더 많은 양이 출구로 나가는 것을 확인하였다.

6) 분무되는 높이에 따른 DPM 농도를 확인한 결과 농도가 낮을수록 높은 DPM 농도가 나타난 것을 확인하였다.

7) MEA를 제작하는 과정에서 동일하게 분무하여도 물에 비해 농도가 높은 나피온 용액과 저농도 나피온 용액은 충분한 촉매층 형성을 위해 더 많은 분무량이 필요하며 분무 높이에 따라 충분한 촉매층 형성을 위해 분무량을 변화시켜야 한다는 것을 알 수 있다.

본 수치 해석 연구를 통해 분무 높이와 슬러리 농도가 분무에 미치는 영향과 이에 따라 나타나는 분무 경향을 파악하였으며 본 연구 결과를 MEA 제작 시스템의 기초 자료로 활용할 수 있다.

후 기

본 논문은 국립금오공과대학교 대학 연구과제비 (2022-2023)로 지원된 연구 결과입니다.

References

1. H. Y. Jung, "Understanding of polymer electrolyte membrane for a unitized regenerative fuel cell (URFC)", *Applied Chemistry for Engineering*, Vol. 22, No. 2, 2011, pp. 125-132, doi: <https://doi.org/10.14478/ace.2011.22.2.125>.
2. J. Jeong, M. Song, H. Chung, I. Na, J. Lee, H. Lee, and K. Park, "Performance and durability of PEMFC MEAs fabricated by various methods", *Korean Chemical Engineering Research*, Vol. 52, No. 5, 2014, pp. 558-556, doi: <https://doi.org/10.9713/kcer.2014.52.5.558>.
3. I. Fouzaï, S. Gentil, V. C. Bassetto, W. O. Silva, R. Maherb, and H. H. Girault, "Catalytic layer-membrane electrode assembly methods for optimum triple phase boundaries and fuel cell performances", *Journal of Materials Chemistry A*, Vol. 9, No. 18, 2021, pp. 11096-11123, doi: <https://doi.org/10.1039/D0TA07470E>.
4. G. H. Kim, E. A. Cho, J. H. Han, S. H. Kim, and K. S. Eom, "Effects of Nafion contents on the performance of MEAs prepared by decal-transfer method", *Journal of Hydrogen and New Energy*, Vol. 23, No. 2, 2012, pp. 125-133, doi: <https://doi.org/10.7316/KHNES.2012.23.2.125>.
5. B. Pak, S. Lee, S. Woo, S. H. Park, N. Jung, and S. D. Yim, "Effect of ionomer content on the anode catalyst layers of PEM fuel cells", *Journal of Hydrogen and New Energy*, Vol. 30, No. 6, 2019, pp. 523-530, doi: <https://doi.org/10.7316/KHNES.2019.30.6.523>.
6. J. W. Ihm, D. K. Choi, and H. Ryu, "Influence of the catalyst composition on electrode performance for polymer electrolyte membrane fuel cells", *Journal of the Microelectronics & Packaging Society*, Vol. 9, No. 3, 2002, pp. 43-48. Retrieved from <https://koreascience.kr/article/JAKO200211922030512.pdf>.
7. S. M. Chung, S. Park, E. Choi, S. Oh, and C. H. Lee, "CFD analytical analysis of jetting characteristics in aerosol jet printing process using particle tracking technique", *Journal of Drive and Control*, Vol. 21, No. 1, pp. 8-15, doi: <https://doi.org/10.7839/ksfc.2024.21.1.008>.
8. J. W. Lee, Y. Y. Lee, J. W. Kim, and R. S. Myong, "Analysis of characteristics of aircraft nozzle flow by injecting water mist", *Journal of Computational Fluids Engineering*, Vol. 25, No. 3, 2020, pp. 102-112, doi: <https://doi.org/10.6112/ksfce.20.25.3.102>.

9. S. H. Ryu, Y. R. Lee, C. M. Shin, and R. S. Myong, “Computational analysis of multiphase flow in aircraft nozzles by solid/liquid mixed particle injection”, Journal of Computational

Fluids Engineering, Vol. 27, No. 3, 2022, pp. 89-99, doi: <https://doi.org/10.6112/kscfe.2022.27.3.089>.