

폴리머 전해질형 연료전지 스택의 최적 운전 조건 연구

조원일[†] · 노용우 · 고영태

한국가스공사 연구개발원
(1995년 5월 27일 접수, 1995년 10월 11일 채택)

The Optimum Operating Condition of Polymer Electrolyte Fuel Cell Stack

Won Ihl Cho[†], Yong Woo Rho and Young Tai Kho

R&D Center, Korea Gas Corporation, 277-1, Il-Dong, Ansan City, Kyunggi-Do 425-150, Korea

(Received 27 May 1995; accepted 11 October 1995)

요 약

E-TEK 전극(20% Pt/C, 0.4 mg Pt/cm²)과 Nafion # 115 이온교환막을 사용한 반응면적이 50 cm²인 단위전지를 세개와 다섯개로 접합하여 폴리머 전해질형 연료전지 스택을 구성하고 이에 대한 성능을 조사하였다. 직-병렬 가스 유로의 흑연 양극판이 Z-pattern 양극판에서 얻은 실험결과 보다 스택의 성능이 우수하게 나타났다. 다양한 밀봉방법과 재료를 이용하여 가스 누출 방지 및 가압실험을 하였다. 가스켓이 없는 밀봉방법인 O-ring을 사용한 양극판으로서 이러한 실험목적을 달성할 수 있었다. 반응면적 50 cm²를 갖는 5-cell 스택은 작동온도 70°C, 작동 압력 3 bar에서 0.7 V, 350 mA/cm²을 나타내었다. 이 스택은 1000시간 이상의 운전에서도 눈에 띄는 성능 저하 현상이 나타나지 않았다.

Abstract—Individual cells having 50 cm² active area were fabricated using E-TEK electrode(20% Pt/C, 0.4 mg Pt/cm²) and Nafion #115 membrane. PEFC stacks having three and five cells were assembled without cooling plate and its performance was investigated. Graphite bipolar plates of series-parallel gas flow channel exhibited better stack performance compared to that obtained for Z-pattern plates. Various sealing methods and materials have been tested to prevent gas leakage and to enable pressurization. The use of O-rings instead of gaskets in the bipolar plates was proposed as the appropriate sealing method. 5-Cell stack of active area of 50 cm² showed the performance of 0.7 V and 350 mA/cm² at the operating temperature and pressure of 70°C and 3 bar respectively. This stack didn't show any appreciable performance degradation even after more than 1000 hours of operation.

Key words: PEFC(Polymer Electrolyte Fuel Cell), Series-parallel Gas Flow Channel, Gasketless Sealing, Multi-cell Stack, Graphite Bipolar Plate

1. 서 론

연료전지는 화학연료에 내재하고 있는 화학에너지를 전기 화학적 반응경로를 통해 전기에너지로 변환시키는 에너지 변환 장치이다. 연료전지를 이용한 발전은 기존의 발전방식보다 발전효율이 높을 뿐 아니라(40%), 발전에 따른 공해 물질의 배출이 거의 없는 특성으로 인해 미래의 발전기술로서 평가되고 있다. 연료전지는 사용되는 전해질의 종류에 따라서 인산형, 알칼리형, 용융탄산염형, 고체산화물형, 폴리머형 등이 있으며, 전해질의 전도특성을 고려하여 운전온도가 결정되게 된다. 일반적으로 알칼리형 및 폴리머형은 저온 연료전지로, 인산형은 중온 연료전지, 용융탄산염형 및 고체산화물형은 고온 연료전지로 분류되고 있다.

폴리머 전해질형 연료전지(Polymer Electrolyte Fuel Cell, PEFC 또는 Proton Exchange Membrane Fuel Cell, PEMFC)는 전해질로서 수소이온 교환 특성을 갖는 고분자 물질을 사용하는 연료전

지로서 다른 유형의 연료전지에 비하여 에너지 변환이 우수할 뿐만 아니라, 전력밀도 특성이 우수한 연료전지이다. 특히 고분자 전해질은 다른 전해질과 비교하여 많은 장점을 제공하는데, 첫째로 부식성이 강한 액상의 전해질이 없으므로 부식의 위험이 없다는 것이다. 뿐만 아니라 전해질의 흐름이나 고갈 등의 문제가 없으므로 제조 및 조립이 쉽고, 운전시에 발생할 수 있는 연료와 공기의 압력차를 견딜 수 있는 능력이 액상의 전해질보다 우수하다. 작동온도가 낮고 냉각상태의 운전이 빨리 이루어질 수 있다는 점도 PEFC의 장점이라 하겠다[1, 2].

1960년대 초의 미항공우주국의 Gemini program에 사용되었던 연료전지가 GE에서 제작한 PEFC였음은 주지의 사실이다. 이 연료전지는 31.7 cm dia.×63.5 cm H의 크기였으며, 30 kg의 중량이다. 이 연료전지는 23.3-26.5 V에서 1 kW의 출력을 나타내었는데(단위 전지당 0.78 V에서 37 mA/cm²) 운전압력은 138-207 kPa(absolute)이고, 온도는 35°C였으며, 순수소 및 순산소를 사용하였다[3]. 이

상에서 보듯이 이 연료전지의 성능은 만족할 만한 것이 아니었으며 특히 전해질로 사용되었던 polystyrene sulfonic acid 자체의 불안전성 때문에 이후의 연구선은 알칼리형 연료전지가 지금까지 사용되게 되었다. 연구자들에 의하면 이러한 폴리머의 불안정성은 C-H결합에 기인하는 것이었으며, 이의 산화 및 분열(cleavage) 등이 장시간의 운전에 장애요인으로 지적되었다.

PEFC에 대한 연구가 다시 활기를 띠게 된 것은 fluorinated carbon이 개발되면서 부터이다. DuPont사가 개발한 Nafion[®]의 경우 수소 이온 전도도가 클 뿐만 아니라 기계적, 열적 안정성이 우수하고, 물에 대한 용해도가 없으면서도 물의 폴리머에 대한 용해도가 매우 커서 이상적인 폴리머 전해질의 조건을 갖추고 있다. 1980년대 후반에 제시된 귀금속 촉매의 함량을 획기적으로 줄일 수 있는 방안 역시 PEFC의 개발노력을 활발하게 한 이유의 하나이다. 최근의 PEFC 개발은 전기자동차에의 응용을 목표로 추진되고 있는 실정이다. 이것은 PEFC가 전기자동차의 동력원으로써의 2차전지의 기술적 제한요소를 보완 혹은 극복할 수 있는 장점이 있기 때문이다 [4].

발전장치로서의 연료전지는 수 많은 연료전지의 적층(stack)을 통해서 만들어진다. 단위전지는 두 개의 전극과 전극사이의 전해질 및 각각의 전극에 필요한 산화제와 환원제를 공급해주고 발생한 전류를 집전할 수 있는 양극판으로 구성되어 있다. 단위전지의 가역전위(reversible potential)는 1.2 V이나 실제로는 반응에 따른 분극 및 저항분극 등의 이유로 0.7 ± 0.1 V의 범위에서 운전된다. 이러한 단위전지를 적층하기 위해서는 단위전지 내부와 단위전지 및 양극판 사이의 기밀유지와 각각의 단위전지 전극(수소극, 산소극)에 반응물을 공급해 주는 가스유로의 선정 등이 해결되어야 할 매우 중요한 문제가 된다.

본 고에서는 폴리머 연료전지의 고효율 및 고전력밀도를 실현하고자 최적의 전극 구조 및 알맞은 적층 설계 또한 전극의 전기촉매와 전해질인 이온교환막(ion exchange membrane)사이의 활성면적을 극대화하는 접합 기술을 확립하여 단위전지에서 성능향상을 고찰하고, 이러한 기법을 토대로 만든 전지를 적층하여 스택(stack)의 성능을 고찰하였다.

2. 실험방법

2-1. 전지준비(고분자막/전극 접합기술)

2-1-1. 고분자막 전처리

폴리머 연료전지는 전해질을 고체인 고분자막을 사용하며, 더욱이 이러한 고분자는 수소이온 전도성이 우수하여야 하며 수소극(anode)에서 H_2 는 산화되어 H^+ 이온을 생성하므로 사용하기 전에 수소이온이 이온교환막에서 전기적 삼투압 성질(electroosmotic property)을 갖도록 수소이온형태로 바뀌어야 한다.

전세계적으로 연료전지용 고분자 막을 개발하고 있는 회사로는 미국에 DuPont사와 Dow Chemical사 그리고 일본의 Asahi Chemical사로 알려져 있으며 이 중 상업용으로 유용한 고분자막은 미국 DuPont사의 Nafion이다. 본 연구에서 사용된 이온교환막은 상업용으로 시판되고 있는 DuPont사의 Nafion # 115이며, 이의 전처리과정은 먼저 단위전지의 활성면적보다 크게 잘라내어 유기불순물을 제거하기 위하여 30 wt% H_2O_2 에 1시간 동안 끓인 후 표면에 남아 있는 H_2O_2 를 세척하기 위하여 증류수에 1시간씩 두 번 끓인다. 금속불순물을 제거하기 위하여 0.5 M H_2SO_4 에 1시간 동안 끓인 후 다시 증류수에 1시간씩 두 번 끓여 막의 전처리를 마친다[5-8].

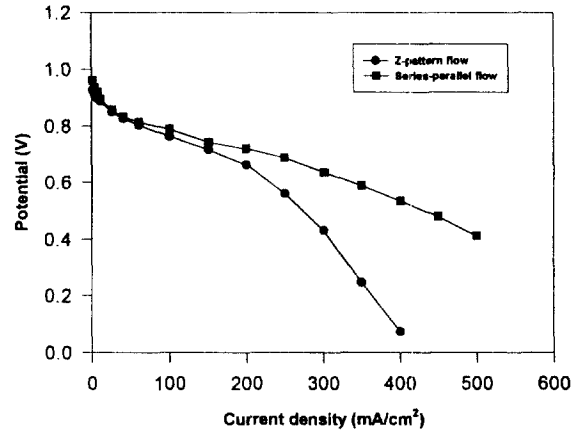


Fig. 1. Effect of flow path on the performance of unit cell using E-Tek electrode and Nafion # 115 membrane ($T_{cell} = 60^\circ C$, $P_{cell} = 1$ bar).

2-1-2. 전극의 전처리

본 연구에서 사용된 전극은 상업용으로 시판되고 있는 고분자 전해질용 전극인 미국 Globetech사 제품으로 담체인 Vulcan XC-72 카본블랙에 20 wt% Pt를 0.4 mg/cm^2 로 함침시킨 전극과, 미국 E-TEK사 제품인 ELAT로 담체인 Vulcan XC-72 카본블랙에 20 wt% Pt를 $0.35 \pm 0.04 \text{ mg/cm}^2$ 로 함침시킨 전극을 사용하였다[9, 10]. 전극의 지지체는 전자 전달이 용이하고 반응 기체를 반응이 일어나는 삼상대로 원활히 공급하여 줄 수 있는 재료가 필요하다. 본 연구에 사용된 양쪽 전극은 모두 지지체로 테프론으로 발수처리한 카본천을 사용하였으며, 전처리과정은 전극을 단위전지의 활성면적으로 잘라내어 전극과 이온교환막과의 접촉면에서 전기촉매인 백금과 전해질인 이온교환막 사이의 활성면적을 넓혀 많은 삼상계면을 형성시키기 위하여 5 wt% Nafion solution을 전극면적에 12 mg/cm^2 로 함침시켜 $80^\circ C$ 에서 2시간 동안 건조시킨다[7, 8, 11].

2-1-3. 이온교환막 및 전극 접합

전처리과정이 끝난 이온교환막과 전극을 접합하는 것이 고분자 전해질 연료전지에서 중요한 요소기술이다. 전극의 전기촉매인 백금과 전해질인 이온교환막이 삼상계면의 극대화된 면적을 갖게 하기 위하여 $145^\circ C$ 에서 1톤(ton)의 압력으로 약 3분여 동안 고온프레스(hot press)를 하여 하나의 단위전지를 완성하게 된다. 제조된 단위전지의 절연상태를 체크하고 단위전지성능을 고찰하였다.

본 연구에서는 PEFC 스택 성능실험을 위한 최적 운전 조건을 구축하기 위하여 단위전지의 활성면적을 50 cm^2 로 하였고 스택의 경우, 반응면적 50 cm^2 인 단위전지를 3장과 5장을 하나의 블록으로 하여 각각의 단위전지 성능과 스택 성능 실험을 하였다.

2-2. 스택실험 준비

2-2-1. 가스 유로 선정

연료전지에서 가스의 유로를 제공하는 흑연판(graphite plate)을 50 cm^2 반응면적을 갖도록 설계하여 사용하였다. 스택의 경우, 단위전지의 경우와 달리 성능에 미치는 영향은 기본적으로 단위전지에서 만족하는 성능을 갖는 동시에 다음과 같은 문제점을 갖고 있다. 먼저 가스의 유로 형상(flow path)에 따라 성능에 많은 영향을 미치는데 특히 PEFC의 경우 연료의 입구측과 출구측 간의 압력은 이온교환막 자체가 수분을 동반하여 반응을 진행하므로 수분의 제거 및 반응의 원활함을 돕기 위하여 그 편차가 커야 하므로 다양한

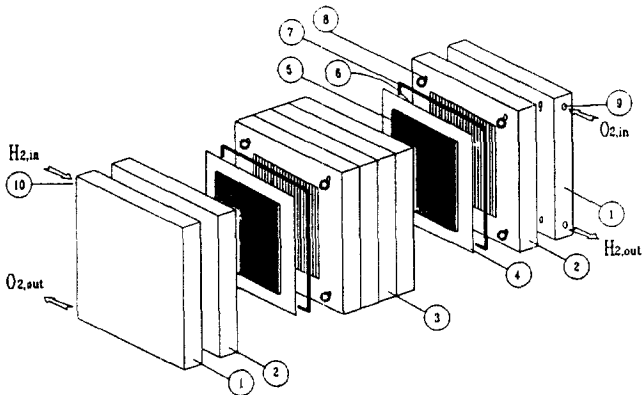


Fig. 2. PEFC stack assembly with O-ring instead of gasket in bipolar plate.

- | | |
|---------------------|------------------------|
| ① Current collector | ⑥ Anode |
| ② End plate | ⑦, ⑧ O-ring |
| ③ Bipolar plate | ⑨ O ₂ inlet |
| ④ Membrane | ⑩ H ₂ inlet |
| ⑤ Cathode | |

디자인을 통하여 알아 보았다. Fig. 1에서 보는 것과 같이 직-병렬 가스 유로 형상(series-parallel gas flow path)이 수십번 반복되는 경로와 Z-pattern 가스 유로 형상으로 실험하였다. 그림에서 보는 바와 같이 압력강하가 큰 직-병렬 가스 유로 형상이 압력강하가 거의 없는 Z-pattern 가스 유로 형상보다 높은 성능을 보여주고 있다. 따라서 본 연구에서는 직-병렬 가스 유로 형상으로 유로를 결정하였다.

2-2-2. 가스 밀봉(sealing)

연료전지 스택 기술에서 가장 중요한 것이 가스 밀봉문제이다. 특히 고분자 연료전지는 연료전지 스택내에 가압을 함으로써 이온교환막의 전기적 역삼투압이 용이하므로 이온 상호간의 물질전달에 의한 분극을 극소화 함으로 최대의 출력을 얻을 수 있다. 본 연구에서는 가스 밀봉으로 많이 알려진 가스켓을 Viton, SBR(styrene-butadiene rubber)[12], silicon rubber 등을 이용하여 실험한 결과 Viton으로 제작한 가스켓이 보다 우수한 성능을 보여 주었으나, 가스켓의 단점은 흑연판 표면의 거칠기가 심하면 심할수록 가압 실험시 가스의 누출이 심하여 스택의 최적 운전에 필요한 특성 결과를 기대할 수 없다. 또한 연료가 가스 유로관을 통과하는 입구측 상단부위에서 기계적인 마찰에 의하여 전극과 이온교환막에 손상을 가함으로써 연료 상호간의 교차현상(cross-over)이 발생하여 성능에 크게 좌우될 뿐만 아니라, 흑연판에도 손상을 입혀 침식현상을 관찰할 수 있었다. 따라서 본 연구팀에서는 가스 밀봉에 대한 수차례에 걸친 성능실험을 토대로 한 결과, Fig. 2와 같이 가스켓 대신 Viton으로 제작한 O-ring을 양극판의 반응면적 주위에 홈을 내서 설치하여 성능실험을 한 결과 상압에서의 성능이 우수하게 나타날 뿐만 아니라 가압실험을 할 경우에도 가스의 누출이 전혀 없고 성능이 월등히 향상됨을 알 수 있었다[13].

2-3. 실험장치

고분자 전해질형 연료전지 스택의 성능 실험은 연료로 고순도 수소와 산소를 사용하여 정압으로 유도하여 여과기를 거쳐서 질량유량계에서 조절된 유량으로 나오게 된다. 고분자 연료전지의 연료는 고분자막이 이온전도성을 갖기 위하여 적절한 수분을 함량해서 스택으로 유입되어야 하므로 특별히 고안한 가습용기(hu-

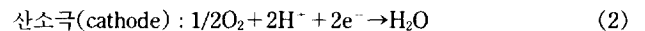
midification bottle)를 거쳐서 각각의 스택연료유로를 향하게 된다. 스택에서 반응 후 나온 반응연료는 후압조절기(back pressure regulator)를 통하여 가압실험을 할 수 있게 조절되도록 한 후 수중 포집하였다.

스택의 전류집전체(current collector)는 알루미늄으로 제작하여 연료의 유로를 만들어 놓고 동시에 반응으로 인한 전류를 받아서 Hewlett Packard사 Electronic load(HP-6050A)을 이용하여 정전류 모드 혹은 정전압 모드로 스택의 전류 및 전압 특성 데이터를 받아서 컴퓨터에 연결, 수시로 데이터를 저장 및 전압-전류 특성을 그래프로 인식하게끔 하였다.

고분자 전해질형 연료전지 스택 성능 특성 측정은 온도와 압력을 변화시키면서 먼저 3-cell stack 실험 후 5-cell stack 실험으로 하였으며, 온도는 50℃에서 90℃ 사이, 압력은 압력계로 1 atm에서 3 atm로 변화시켜 가면서 측정하여 이에 따른 전압-전류 성능 곡선을 얻었다.

3. 결과 및 고찰

고분자 연료전지(Polymer Electrolyte Fuel Cell) 스택의 경우 반응의 경로는 단위전지에서서의 경우와 똑같은 메카니즘을 갖는다. 즉, 다공성의 전극표면에 백금촉매와 수분이 함량된 이온전도성 고분자막인 전해질층에서 연료가 주입되면서 삼상계면을 형성하여 전기화학반응이 일어나 수소는 수소이온으로 산화된 후 이것이 전해질층을 전기화학적 역삼투압(electroosmosis)에 의하여 산소극으로 이동하여 이곳에서 산소의 환원 반응이 일어나 물을 생성하고, 전하는 외부회로로 나가서 부하에서 전력을 공급한다. 이 때 각각의 전극에서의 반응식은 다음과 같다.



따라서 전체 반응식과 Nernst 식은 다음과 같다.



$$E = E^0 + \frac{RT}{2F} \ln \left(\frac{P_{\text{H}_2}}{P_{\text{H}_2\text{O}}} \right) + \frac{RT}{2F} \ln P_{\text{O}_2}^{1/2} \quad (4)$$

Nernst 식은 전기화학반응의 표준전위(E^0)와 반응물 및 생성물의 온도와 분압(활동도)의 평형 전위(E)에 대한 관계식이다. (4)식에 의하면 주어진 온도에서 반응물(수소, 산소)의 압력을 증가시키면 평형전위가 증가하게 됨을 알 수 있다[14]. 따라서 고분자 전해질형 연료전지는 전지의 승온 및 가압 운전을 통하여 전기화학반응을 촉진시켜 성능을 향상시킬 수 있다. 본 PEFC 스택 실험은 3-cell 스택을 이용하여 multi-cell 스택실험을 위한 최적 운전조건을 확립한 후 5-cell 스택으로 스택을 확장하여 스택의 운전조건에 따른 변화를 측정하였다.

3-1. 3-cell 스택 성능실험

전지의 반응면적이 50 cm²인 스택실험은 연료의 흐름을 직-병렬 유로로 하여 온도 및 압력에 따른 성능을 비교하여 최적의 운전 조건을 알아 보았다. Fig. 3은 압력 1기압에서, 온도가 연료전지 성능에 미치는 영향을 나타내었다. 온도가 50℃일 때 보다 70, 90℃일 때가 OCP(open circuit potential) 및 V-I 특성이 향상됨을 알 수 있는데 온도가 상승함에 따라 연료에 대한 전기촉매(electrocatalyst)상에서 전하전달 반응속도가 증가하여 전류밀도가 증가함을 알

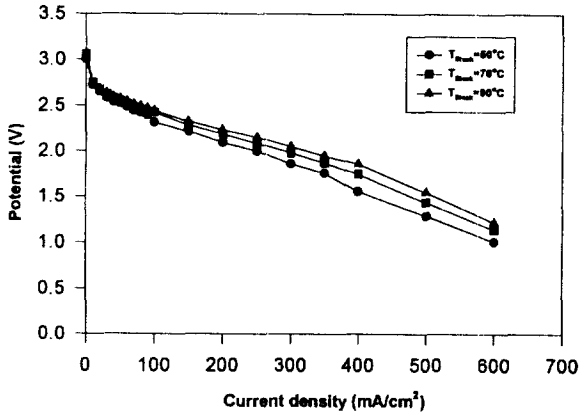


Fig. 3. Effect of temperature on the performance of tri-cell stack using E-Tek electrode and Nafion #115 membrane($P_{Stack} = 1$ bar).

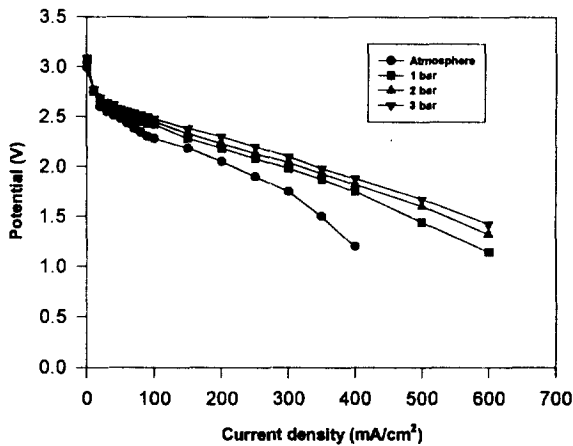


Fig. 4. Effect of pressure on the performance of tri-cell stack using E-Tek electrode and Nafion #115 membrane($T_{Stack} = 70^{\circ}\text{C}$).

수 있으며, 또한 70°C 와 90°C 의 전위-전류 특성은 단위전지 0.7 V에 해당하는 2.1 V에서 250 mA/cm^2 , 295 mA/cm^2 인데 반해 단위전지 0.5 V인 1.5 V에서는 480 mA/cm^2 , 518 mA/cm^2 으로 그 편차가 현저히 줄어드는 것으로 나타나는데, 이는 온도가 향상됨에 따라서 이온교환막의 전도도(conductivity)는 지수함수적으로 증가하며 고온(80°C 이상)에서 화학적으로 불안정하여 탈수반응(dehydration)이 일어나 크게 성능이 향상되지 않으므로 전지성능에 큰 차이가 없음을 알 수 있다[16]. 뿐만 아니라 증기압이 상승하여 반응활성은 증가하나 물의 포화증기압도 올라가 반응가스의 농도가 낮아짐으로써 물분율(mole fraction)이 현저히 감소하여 반응 활성은 향상됨에도 불구하고 큰 영향을 미치지 못함을 알 수 있다[8, 11, 15].

Fig. 4는 전지의 반응온도가 70°C 일 때, 압력의 변화에 따른 성능변화를 나타내 준다. 게이지 압력 상압과 1기압을 비교하면 가압했을 경우가 100 mA/cm^2 이상 성능면에서 우수함을 알 수 있다. (4)식에 의하여 같은 온도에서 가압으로 인하여 반응물(수소, 산소)의 물분율이 증가하면서 평형전위도 증가하여 성능이 향상됨을 확인할 수 있었다. 그러나 2기압에서 4기압까지의 성능 향상이 둔화되는 것은 고분자 전해질형 연료전지의 경우 산소극(cathode)에서 물의 생성이 많아 이를 효율적으로 외부로 방출시켜야 하는데,

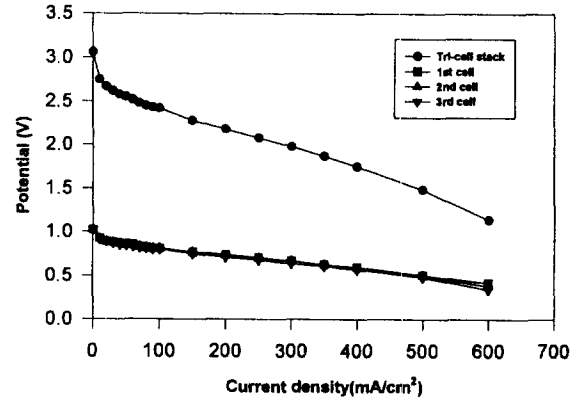


Fig. 5. Plots of potential vs. current density for tri-cell stack and individual cell using E-Tek electrode and Nafion #115 membrane (70°C , 1 bar of H_2/O_2).

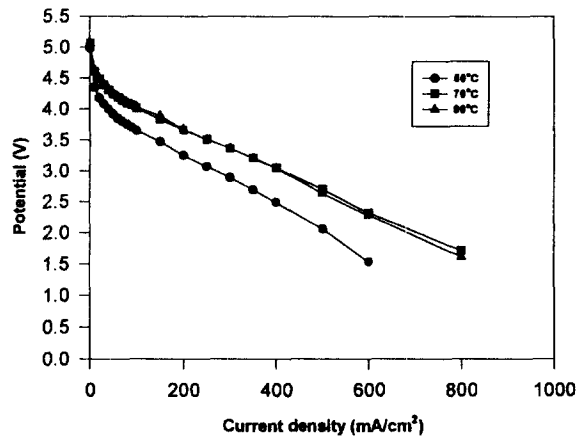


Fig. 6. Effect of temperature on the performance of 5-cell stack using E-Tek electrode and Nafion #115 membrane($P_{Stack} = 1$ bar).

2기압 및 4기압의 경우 상압보다 전지성능의 향상을 가져다주는가 하나 그만큼 많은 양의 물을 생성하여 스택의 설계조건이 같은 상황에서 압력차(pressure drop)가 크지 않아 일종의 flooding이 발생하는 현상이라 사료된다.

Fig. 5는 3-cell 스택의 성능과 각각의 단위전지의 성능에 대한 그래프로써 전지의 온도는 70°C , 압력은 1기압이다. 전압 2.1 V, 전류밀도 250 mA/cm^2 일 때, 각 단위전지의 값은 수소연료 입구측에서부터 전압 0.7 V에서 각각 255 , 253 , 242 mA/cm^2 로 전류밀도가 일정한 값을 나타내고 있으며 단위전지 각각의 성능이 매우 안정된 상태를 보여주고 있음을 알 수 있다. 3-Cell stack 실험결과를 토대로 고분자 전해질형 연료전지 스택실험의 조건은; 단위전지의 온도 70°C , 수소측 가습용기 온도 80°C , 산소측 가습용기 75°C 전지내 압력은 게이지압력으로 1기압, 연료로는 99.999% 수소와 99.99% 산소 스택의 밀봉(sealing)은 O-ring을 사용하였으며, 연료흐름은 직-병렬 유로로 결정하였다.

3-2. 5-cell 스택 성능실험

3-2-1. 온도, 압력 및 단위전지간 성능

3-Cell 스택의 성능 실험결과와의 조건으로 온도, 압력 및 각 단위전지간의 전압-전류 특성에 대해서 알아보았다. Fig. 6은 스택의

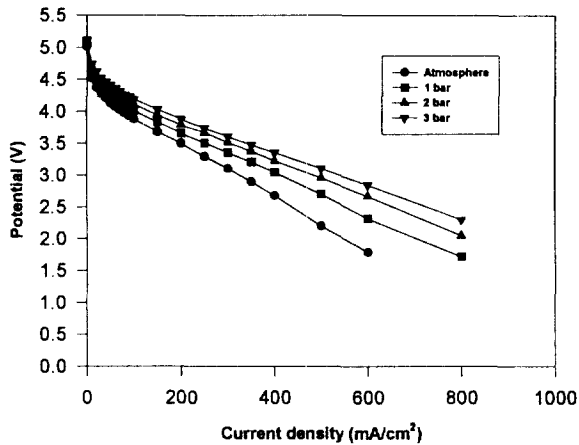


Fig. 7. Effect of pressure on the performance of 5-cell stack using E-Tek electrode and Nafion #115 membrane ($T_{stack} = 70^\circ\text{C}$).

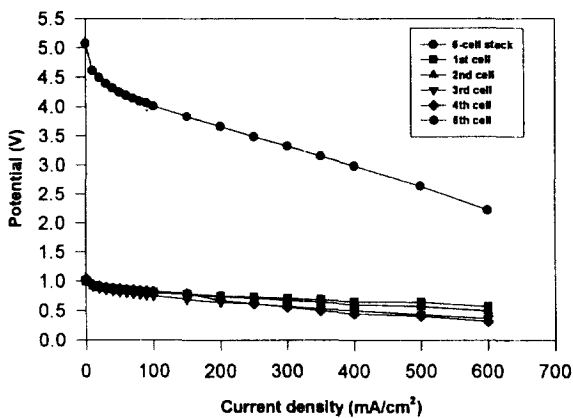


Fig. 8. Plots of potential vs. current density for 5-cell stack and its individual cell using E-Tek electrode and Nafion #115 membrane (70°C , 1 bar of H_2/O_2).

온도변화에 따른 전압-전류 실험인데 3-cell 스택과 거의 유사한 성능곡선을 나타내주는데, 70°C 와 90°C 에서의 성능 차이가 거의 없는 것으로 보아 multi-cell 일수록 기술적으로 stacking의 어려움이 있는 것으로 사료된다. 즉 90°C 에서 성능의 향상이 70°C 에서의 성능과 비슷한 것은 전지간 또는 연료의 흐름을 방해하는 설계 등에 따라서 온도 분포 및 압력분포가 균일하게 이뤄지지 않은 까닭으로 사료되며, 스택에 균일한 압력을 제공하는 가압실험의 결과를 Fig. 7에 나타냈는데 그림에서 볼 수 있듯이 가압에 의하여, 확실한 성능차이를 볼 수 있다. 즉 단위전지 0.7 V가 되는 3.5 V에서 게이지 압력으로 1기압일 때, $253 \text{ mA}/\text{cm}^2$ 이고, 3기압일 때 전류밀도가 $350 \text{ mA}/\text{cm}^2$ 으로 크게 성능이 향상됨을 알 수 있다.

Fig. 8은 5-cell 스택의 각 단위전지에서의 전압 및 전류 특성을 보여주고 있다. 고전압 저전류에서는 cell간 전압이 일정한 분포를 나타냈는데, 저전압 고전류에서는 cell의 중심에서부터 심한 성능 저하를 관찰할 수 있었다. Fig. 9에서 이러한 현상을 고찰하기 위하여 전위에 따른 각 cell간 전류밀도 분포를 나타냈다. (a)에서 보면, OCP는 큰 차이가 없지만, 전류밀도가 높으면 게이지 압력으로 상압일 때 수소측 입구에서 4번째 전지가 가장 낮은 성능을 보이며, (b)는 1기압으로 가압할 때의 전류밀도 분포를 나타냈는데, 저 전압 고 전류에서 수소측 입구쪽에서 세번째 전지를 중심으로 양끝에

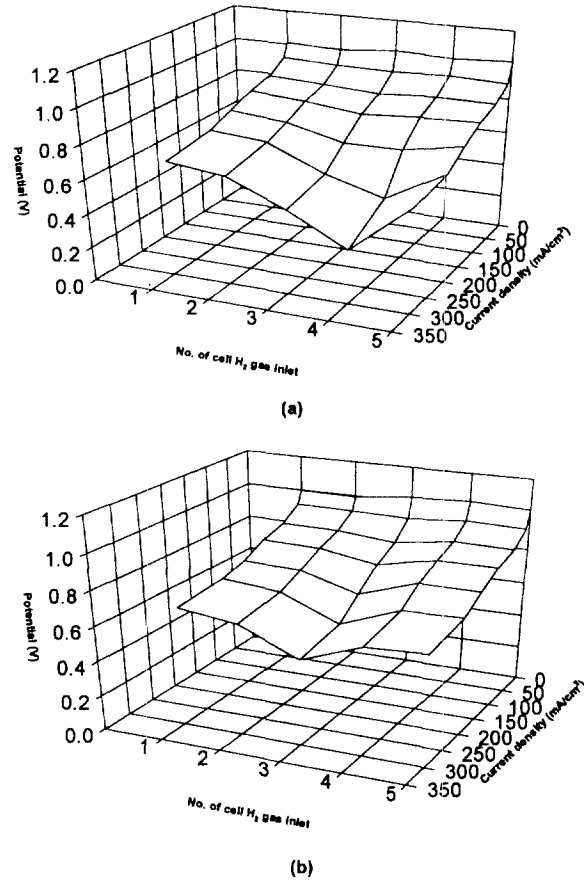


Fig. 9. Plots of current density and current distribution vs. potential for 5-cell stack using E-Tek electrode and Nafion #115 membrane at 70°C [(a) atmosphere, (b) 1 bar].

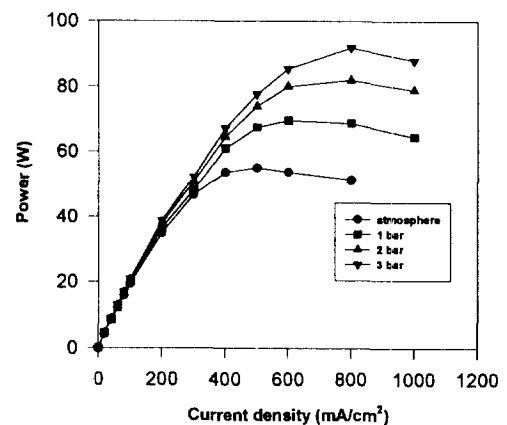


Fig. 10. Plots of power vs. current density for 5-cell stack using E-Tek electrode and Nafion #115 membrane ($T_{stack} = 70^\circ\text{C}$).

있는 전지와 포물선을 그리며 성능이 향상됨을 관찰할 수 있었다. (a)와 같이 낮은 성능을 보여주는 이유는 연료전지의 발열반응으로 인하여 중앙의 전지가 국부적인 열화현상으로 이온교환막에서는 탈수반응이 일어나 수소의 산화반응이 둔화되며 산소극에서는 보다 작은 반응면적이 반응에 참여하므로 생성된 물분자들이 전극면적을 덮는 "flooding" 현상이 일어난다고 사료된다. 이러한 원인을 가스 유로관(gas channel) 내에서 연료를 균일하게 분산시키는 가압실험

Table 1. Performance data of multi-cell using E-Tek electrode(0.4 mg Pt/cm², area 50 cm²) and Nafion #115 membrane

Cell temperature(°C)	Reactants	Pressure	Cell stack	Current current density	Voltage voltage/cell	Max. power
70°C	H ₂ /O ₂	1 atm	3-cell stack	12.5 A	2.1 V	37 W
				250 mA/cm ²	0.7 V/cell	
		3 atm		15 A	2.1 V	41 W
				300 mA/cm ²	0.7 V/cell	
		1 atm	5-cell stack	12.5 A	3.5 V	70 W
				250 mA/cm ²	0.7 V/cell	
		3 atm		17.5 A	3.5 V	92 W
				350 mA/cm ²	0.7 V/cell	

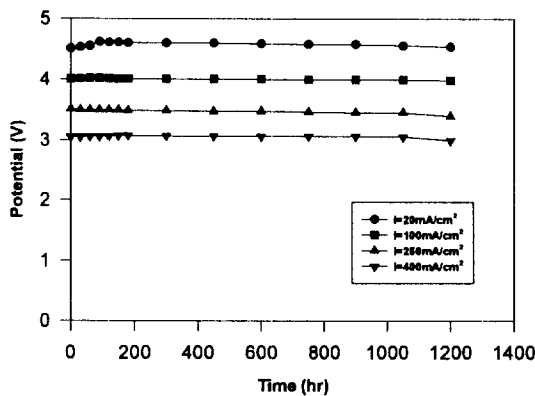


Fig. 11. Performance data of 5-cell stack using E-Tek electrode and Nafion #115 membrane(T_{Stack} = 70°C, P_{Stack} = 1 bar).

/cm²이며, 상응하는 스택의 전압-전류는 3.5 V에서 17.5 A이다.

(2) Gas manifold시 스택에서 가스의 누출로 인한 가압실험에 약간의 문제가 있었으나, O-ring과 절연을 위한 접착성이 있는 가스켓으로 가스 밀봉(sealing)을 하여 우수한 성능 향상을 볼 수 있었다.

(3) 가스의 흐름 및 압력차를 고려하여 multi-cell 스택의 경우, 양극판(bipolar plate)을 직-병렬 유로(series-parallel flow)로 선택하여 우수한 성능 향상을 가져 왔다.

감 사

본 연구는 한국가스공사, (주)유공, 그리고 통상산업부에서 시행하는 대체에너지 기술 개발사업비의 지원으로 수행된 결과이며 이에 감사를 드립니다.

참고문헌

- Srinivasan, S., David, J. M., Hermann, K., Mohammad, A. E. and Appleby, A. J.: *J. Power Sources*, **29**, 367(1990).
- 고영태, 이진홍 : *J. of Korean Ind. & Eng. Chemistry*, **3**(4), 574 (1992).
- Kinoshita, K.: "Electrochemical Oxygen Technology", John Wiley & Sons. Inc., New York(1992).
- Srinivasan, S., Omourtag, A. V., Arvind, P., Manko, D. J. and Appleby, A. J.: *J. Power Sources*, **36**, 299(1991).
- Srinivasan, S., Ticianelli, E. A., Deroulin, C. R. and Redondo, A.: *J. Power Sources*, **22**, 359(1988).
- Ticianelli, E. A., Deroulin, C. R. and Srinivasan, S.: *J. Electroanal. Chem.*, **251**, 275(1988).
- 이승재, 최경환, 이태희, 조원일, 노용우, 고영태 : 화학공학 투고중(1995).
- 노용우, 조원일, 고영태, 이진홍, 목영일 : 화학공학, **33**(2), 157 (1995).
- Wilson, M. S. and Gottesfeld, S.: *J. Electrochem. Soc.*, **139**, L28 (1992).
- Taylor, E. J., Anderson, E. B. and Vilambi, N. R. K.: *J. Electrochem. Soc.*, **139**, L45(1992).
- Rho, Y. W., Velez, O. A., Srinivasan, S. and Kho, Y. T.: *J. Electrochem. Soc.*, **141**, 2084(1994).
- Steck, A. E. and Wei, J.: PCT WO 92/22096(1992).
- 노용우, 조원일, 유형욱, 고영태, 윤경식, 한재성, 정연관 : 특허번호 95-7750(1995).

[그림 (b)]을 통하여 성능의 향상을 확인할 수 있다. 상기의 현상은 향후 전극의 반응면적을 키우고 scale-up된 스택실험에서 규명하고자 한다.

3-2-2. 최대출력 및 장시간 실험

Fig. 10은 50 cm²의 활성면적을 갖는 5장 스택의 최대출력을 보여주고 있다. 그림에서 보면, 통상 연료전지의 작동 전위인 0.65-0.75 V에서 3기압일 때, 전력 66 W를 보여주고 있으며, 최대출력은 92 W를 나타내주고 있음을 알 수 있다. 또한 장시간 운전을 통하여 스택의 성능 저하를 볼 수 있는데, Fig. 11에서 볼 수 있듯이 스택의 온도 70°C, 압력 1 atm에서 전압 3.5 V, 전류밀도 250 mA/cm²로 장시간 안정한 운전을 함을 볼 수 있었다. 이상의 데이터를 Table 1에 정리하였다. 반응 면적 50 cm²인 스택의 경우 3-cell 스택은 3기압에서 3.5 V에서 전류밀도가 300 mA/cm², 5-cell 스택의 경우 3.5 V에서 350 mA/cm²이며, 최대출력은 92 W로 나왔다.

4. 결 론

반응면적 50 cm²를 갖는 고분자 전해질형 연료전지 스택 개발에 대해서 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 스택의 성능은; 수소측 가습용기 온도 80°C, 전지의 온도 70°C, 산소측 가습용 용기 온도 75일 때, 3-cell의 경우 1기압에서 0.7 V에서 250 mA/cm²이며, 상응하는 스택의 전압-전류는 2.1 V에서 12.5 A이며, 3-cell의 경우 3기압에서 0.7 V에서 300 mA/cm²이며, 상응하는 스택의 전압-전류는 2.1 V에서 15 A이다. 5-Cell의 경우 1기압에서 0.7 V에서 250 mA/cm²이며, 상응하는 스택의 전압-전류는 3.5 V에서 12.5 A이며, 5-cell의 경우 3기압에서 0.7 V에서 350 mA

14. Hirschenhofer, J. H., Stauffer, D. B. and Engleman, R. P.:
"Fuel Cells A Handbook(Revision 3)", U.S. Department of
Energy(1994). **141**, 2089(1994).
15. Rho, Y. W., Srinivasan, S. and Kho, Y. T.: *J. Electrochem. Soc.*,
16. Appleby, A. J. and Foulkes, F. R.: "Fuel Cell Handbook", Van
Norstand Reinhold, New York(1989).