

3 kW급 고분자전해질 연료전지 스택의 운전특성 연구

최형준 · 안상열 · 조성아 · 이정규 · 심종표 · 차석렬 · 하홍용 · 홍성안 · 임태원* · 오인환†

한국과학기술연구원 전지 · 연료전지연구센터

*현대자동차(주) 선행연구실

(2000년 2월 7일 접수, 2000년 4월 18일 채택)

A Study on Operational Characteristics of the 3 kW Class PEMFC Stack

Hyung-Joon Choi, Sang-Yeoul Ahn, Sung-Ah Cho, Jeong-Kyu Lee, Joong-Pyo Shim,
Suk-Yal Cha, Heung Yong Ha, Seong-Ahn Hong, Tae Won Lim* and In-Hwan Oh†

Battery and Fuel Cell Research Center, Korea Institute of Science and Technology

*Advanced Research Group, Hyundai Motor Company

(Received 7 February 2000; accepted 18 April 2000)

요 약

전극 유효면적이 200 cm^2 인 단위전지를 39단 적층하여 항류흐름형 스택을 제작하고 이에 대한 운전특성을 조사하였다. 작동압력 1기압, 작동온도 75°C 의 조건 하에서 반응기체로 수소/산소를 사용하였을 경우의 최대출력은 $3.94 \text{ kW}(0.51 \text{ W/cm}^2/\text{cell})$ 이었으며 수소/공기를 사용하였을 경우는 $2.53 \text{ kW}(0.32 \text{ W/cm}^2/\text{cell})$ 였다. 스택 내의 각 단위전지들에 대한 전압손실 요인을 분석한 결과 전압손실은 주로 전극의 분극저항 때문인 것으로 나타났다. 단위전지들 간에 일부 불균일한 성능 분포 및 온도분포가 관찰되었으나 90시간 이상의 연속운전이 가능하였다.

Abstract – A counter-flow type 39-cell proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) stack with an effective electrode area of 200 cm^2 has been assembled and its operational characteristics were investigated. Under the condition of atmospheric pressure and 75°C , the maximum power of the stack was $3.94 \text{ kW}(0.51 \text{ W/cm}^2/\text{cell})$ and $2.53 \text{ kW}(0.32 \text{ W/cm}^2/\text{cell})$ for H_2/O_2 and H_2/air , respectively. The analysis of the factors causing voltage losses revealed that polarization resistance of the electrodes was the main reason. Although ununiform distribution in voltage and temperature of the unit cells was observed, the continuous operation of the stack beyond 90 hours was possible.

Key words: Proton Exchange Membrane Fuel Cell (PEMFC), Stack

1. 서 론

고분자전해질 연료전지(proton exchange membrane fuel cell; PEMFC)는 수소이온교환 특성을 갖는 고분자막을 전해질로 사용하는 연료전지로서 다른 형태의 연료전지에 비하여 효율이 높고 전류밀도 및 출력밀도가 크며 시동시간이 짧은 동시에 부하변화에 대한 응답특성이 빠른 특성이 있다[1, 2]. 특히 전해질로 고분자막을 사용하므로 부식 및 전해질 조절이 필요 없고, 이미 확립된 기술인 메탄올 개질기의 적용이 가능하며, 반응기체 압력변화에도 덜 민감하다. 또한 디자인이 간단하고 제작이 쉬우며 연료전지 본체재료로 여러 가지를 사용할 수 있는 동시에, 부피와 무게도 작동원리가 같은 인산 연료전지에 비해 적다. 이러한 특성 이외에도 다양한 범위의 출력을 낼 수 있는 장점이 있기 때문에 고분자전해질 연료전지는 무공해 차량의 동력원, 현지설치형 발전, 우주선용 전원, 이동용 전원, 군사용 전원 등 매우 다양한 분야에 응용될 수 있다.

그러나 고분자전해질 연료전지는 낮은 온도에서 작동되므로 폐열을 활용할 수 없고 고온에서 작동되는 개질기와 연계하기가 어렵다는 문제점이 있으며 전극촉매로 Pt를 사용하기 때문에 반응기체 내에서의 CO 허용치가 낮고 제조비용을 줄이기 위해서 촉매 함침량을 크게 낮추어야 하는 어려움이 있다. 또한 전해질로 사용하는 고분자막의 값이 매우 비싸고 운전중에 고분자막의 수분함량 조절이 어렵다는 단점이 있다[3].

고분자전해질 연료전지는 원래 1960년대에 Gemini 우주선과 같이 특수 목적으로 사용되었으나, 1980년대 말에 이르러 무공해 차량의 동력원으로 활용될 것이 기대됨에 따라 다시 활기를 찾게 되어 현재 전세계적으로 이에 대한 연구개발이 활발히 진행되어 오고 있다. 특히 Green Round(기후변화협약)를 통한 CO_2 의 총량 규제, 저공해 자동차 의무 판매를 통한 자동차 배기가스의 규제 등이 압박해 오며 따라 각국의 자동차 회사들은 연료전지 자동차와 같은 무공해 자동차의 개발이 급박하게 되었다. 연료전지 자동차는 환경친화성, 연료효율성 및 연료공급 편리성을 겸비한 자동차로서 차세대 자동차 중에서도 가장 실용화의 가능성이 큰 것으로 평가되고 있다. 또한 자동차용 연료전지 시스템이 실용화될 경우 자동차로 인한 환경오염과 에너지 소비문제를 완화시켜

† E-mail: oih@kistmail.kist.re.kr

줄 수 있을 뿐만 아니라 건물 및 일부지역의 현지설치형 소규모 발전, 잠수함 및 이동통신 등과 같은 군수용 발전에 곧바로 활용될 수 있다.

고분자전해질 연료전지 스택 개발은 캐나다의 Ballard Power Systems 사가 가장 앞서 있어 버스용 200 kW급 스택과 소형 승용차용 50 kW급 스택을 각각 개발 완료하여 현재 차량 탑재 실험을 실시하고 있으며, 미국과 일본, 이태리 등의 회사에서도 수십 kW급 스택을 개발 완료한 상태이다[4-7]. 특히 Daimler-Chrysler, Ford, Ballard Power Systems는 콘소시엄을 구성하여 2004년부터 연간 40,000대 규모의 연료전지 자동차를 양산할 계획으로 있어 고분자전해질 연료전지를 이용한 저공해 자동차가 조만간 실용화될 것으로 보인다. 국내에서는 1990년대 중반 한국가스공사에서 kW급 스택 제작을 시도한 이래[8], 현재 수 kW급 스택을 제작하여 성능 실험을 실시하고 있는 단계이다[9, 10]. 한편 1998년 후반부터 시작된 선도기술개발사업의 차세대자동차 프로그램에서는 2002년까지 25 kW급 연료전지자동차를 자체 개발하는 것을 목표로 하고 있다.

본 연구는 선도기술개발사업의 일환으로 수행된 것으로서 25 kW급 스택의 개발에 앞서 소형 스택을 제작 운전함으로써 25 kW급 스택 제작 시의 문제점 파악을 목표로 수행되었다. 또한 스택 내의 각 단위전지들에 대한 전압손실 요인을 분석하는 방법은 문헌에 보고된 바 없어 이를 확립하고자 하였다. 이를 위하여 대면적의 전극과 전극-막 어셈블리를 직접 제작하고 이를 적층하여 3 kW급 스택을 제작하였으며, 제작된 스택을 운전하면서 스택의 성능 특성을 조사 분석하였다.

2. 실험

2-1. 전지 구성요소

전극 및 전극-전해질막 어셈블리(membrane-electrode assembly, MEA)의 제작은 Fig. 1의 공정도에 따라 수행되었다. 전극에서 촉매 물질로는 carbon black 담체(Vulcan XC-72R, Cabot)에 Pt가 40 wt% 담겨진 Pt/C 분말(ElectroChem 또는 E-TEK)을 사용하였다. 먼저 지지체인 carbon paper 위에 carbon black 분말을 tape casting 방법으로 도포하여 촉매층의 지지

체를 형성시켰다. Iso-propyl alcohol(IPA) 혹은 n-butyl acetate(NBA) 용매에 촉매를 넣고, 초음파 세척기를 사용하여 용매 내에 촉매를 균일하게 분산시키면서 여기에 일정량의 Nafion 용액을 첨가하여 슬러리를 만들었다. 제조된 슬러리를 앞서 제조한 지지체 위에 air brush를 사용하여 도포함으로써 전극을 제조하였다. 이때 Pt의 담지량은 anode와 cathode 각각 0.4 및 0.7 mg/cm²로 하였다. 제조된 전극을 미리 전처리된 Nafion 115 고분자 전해질막 양쪽에 놓은 후 140°C, 200 atm 하에서 2분간 hot-pressing하여 MEA를 제조하였다. 제조된 MEA의 전극 크기는 200 cm²(141 mm×141 mm)였다. 전지 구성요소의 성능은 단위 전지에서 전류-전압 특성을 측정하여 구하였다.

2-2. 스택의 구성

스택은 분리판 위에 앞서 제작한 MEA를 놓은 후 다시 분리판을 놓는 방식을 반복함으로써 제작된다. 스택의 제작에 사용된 분리판은 graphite에 수지를 함침시킨 후 기계 가공하여 제작되었다. 분리판의 유로는 series-parallel flow 패턴이었다. 분리판의 두께는 5 mm를 기준으로 하였으나 분리판 내부로 냉각수가 흐르는 분리판(냉각판)의 경우 두께를 10 mm로 하였다. 스택내부의 온도 분포를 균일하게 하고 각 단위 전지에 공급되는 반응가스의 분배를 가급적 균일하게 하기 위하여 연료 가스 및 산화제를 각 단위전지를 기준으로 향류 흐름을 통하여 접촉하게 하였다. 반응기체의 분배는 내부 메니폴드 방식을 채택하였다. 반응에 의하여 발생되는 열을 제거하여 스택내의 온도분포를 일정하게 하기 위하여 단위전지 2개당 1개씩의 분리판을 설치하였다. 전해질의 적정 습도 유지를 위하여 외부 가습기를 통하여 스택을 가습하도록 설계하였다. 스택의 사용을 위한 가열은 외부 가습기를 통하여 가열되어 유입되는 가습 기체를 통하여 행하거나 냉각수의 온도를 조절함으로써 수행되도록 설계하였다. 스택에 사용된 MEA의 전극 면적은 200 cm², 적층된 단위 전지 수는 39장이었으며 자세한 사양은 Table 1에 정리된 것과 같다.

2-3. 스택의 운전 및 성능 측정

스택의 가동은 가습기를 통하여 가습된 기체를 스택에 흘리면서 서서히 작동온도까지 상승시킴으로써 시작된다. 이때 스택 내부의 각 단위 전지간에 온도차가 발생하지 않도록 가급적 서서히 스택의 온도를 상승시켰다. 온도 상승 시 연료극 쪽에는 가습된 수소를, 산화극 쪽에는 가습된 산소를 흘려주어 고분자전해질 막이 서서히 수분을 흡수하여 수소이온 전도성을 갖도록 하였으며, 전극에서는 촉매인 Pt가 각각의 기체 상태에 따라 환원 혹은 산화상태로 존재하도록 하였다. 전지가 작동온도에 달하여 안정상태에 이르면 낮은 부하를 걸어준 후 전지전압이 안정한 상태가 될 때까지 약 24시간 동안 방치하였다. 냉각수는 산화제와 동일한 방향으로 공급되어 냉각 재킷이 부착된 분리판을 지나 다시 항온조로 들어가도록 하였다. 이때 사용되는 냉각수는 전류가 통하지 않도록 고순도의 증류수를 사용하였다. 주어진 부하에 대하여 전압의 변동이 없을 때 즉, 전지가 정상상태에 도달되었을 때 전류-전

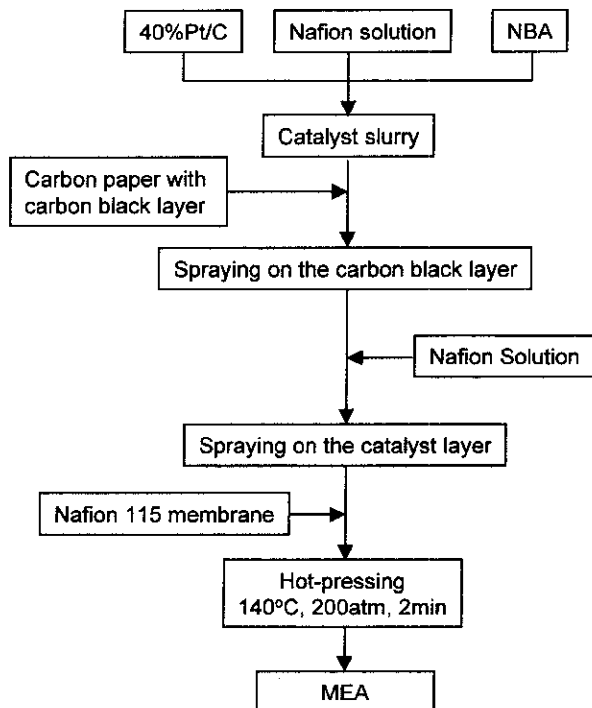


Fig. 1. MEA(Membrane-electrode assembly) fabrication process.

Table 1. Specification of the 3 kW class PEMFC stack

Item	Specification
Output power	3.94 kW(H ₂ /O ₂), 2.54 kW(H ₂ /air)
Area of electrode	200 cm ² (14.1 cm×14.1 cm)
Number of cells	39
Gas distribution	Counter-flow(internal manifold)
Anode	0.4 mgPt/cm ²
Cathode	0.7 mgPt/cm ²
Electrolyte membrane	Nafion 115
Power density	0.17 kW/liter

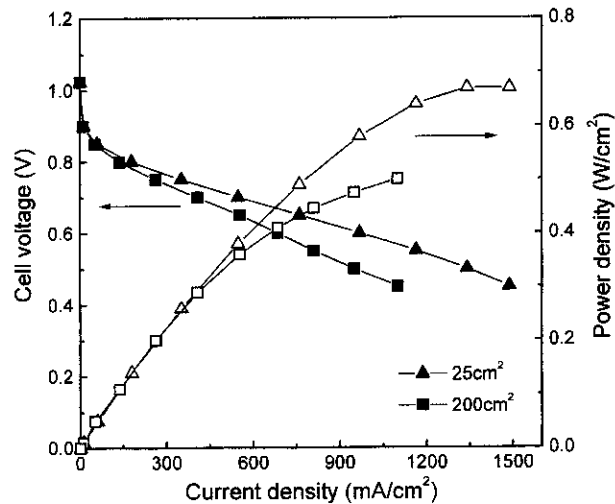


Fig. 2. Comparison of the cell performance between 25 cm² cell and 200 cm² cell; $T_c=75^\circ\text{C}$, $T_f=80^\circ\text{C}$, $T_o=85^\circ\text{C}$, $U_f=0.5$, $U_o=0.25$, and $P=1$ atm.

압 특성을 측정하였다. 스택의 전류-전압 특성은 스택의 온도, 압력, 가습 조건 등에 따라 영향을 받는다. 본 연구에서는 75°C , 1기압 기준으로 스택을 운전하였으며 가습기 온도는 anode측 80°C , cathode측 85°C 로 하였다. 반응가스는 연료로 순수 수소를, 산화제로 순수 산소 혹은 공기를 사용하였으며 연료 및 산화제의 이용률은 전류밀도 720 mA/cm^2 를 기준으로 각각 50% 및 25%가 되도록 유속을 유지하였다. 스택의 연속 운전은 144 A (720 mA/cm^2)의 일정부하(정전류) 상태에서 수행하였다. 각 변수의 영향을 살펴보기 위하여 실험대상 변수를 제외한 변수를 모두 고정하고 실험을 실시하였다. 전지의 내부저항은 개회로 상태에서 milliohmmeter(HP 4238A)를 사용하여 측정하였으며, 스택 전체 및 각 단위 전지 각각의 내부 저항을 측정함으로써 내부저항에 의한 전지 성능감소 정도를 분석하였다. kW급 스택을 제작하기에 앞서 전지 면적이 25 cm^2 , 200 cm^2 인 단위전지 실험을 통하여 전지의 scale-up시 수반되는 문제점도 분석하였다.

3. 결과 및 토론

3-1. 단위 전지

촉매전극과 전해질 막으로부터 MEA를 제작한 후 단위전지를 구성하여 운전하였으며 MEA의 크기에 따른 전지 성능 변화를 측정한 결과 Fig. 2와 같은 결과를 얻었다. 전극 면적이 25 cm^2 인 단위전지의 경우에 비해 200 cm^2 인 단위전지의 경우 전류밀도는 0.6 V 에서 약 280 mA/cm^2 정도 낮음을 볼 수 있었다. 각 단위전지의 출력 밀도는 전지 전압이 0.6 V 일 때 전극면적 25 cm^2 의 경우 0.58 W/cm^2 , 200 cm^2 의 경우 0.41 W/cm^2 였으며, 최고 출력 밀도는 전지 전압이 0.45 V 일 때 25 cm^2 의 경우 0.67 W/cm^2 , 200 cm^2 의 경우 0.50 W/cm^2 였다. 이와 같이 전극 면적 증가 시 전지 성능이 감소한 이유는 촉매의 불균일한 도포 등 전극구성 요소(MEA) 제조 시의 문제점과 전지 내부에서의 유량, 온도 그리고 반응 기체 분포의 불균일로 인한 농도 분극 증가 혹은 체결 압력의 불균일성 증가 등의 문제점에 기인하는 것으로 판단된다. Milliohmmeter로 전지의 내부 저항을 측정한 결과 25 cm^2 단위전지의 내부 저항이 $5.5\text{ m}\Omega$ 인데 반하여 200 cm^2 단위전지의 내부저항은 $1.22\text{ m}\Omega$ 로 측정되었다. 전극 면적이 8배 증가하면 내부 저항은 이론상으로 1/8로 감소하여야 하지만 본 실험의 경우 약 1/4 정도만 감소하였다. 이로 미루어 내부저항의 상대적 증가가 전지 성능 감소의 한 원인이 되었음을 확인할 수 있었다. 이와 같은 문제는 전극과 전해질막 사이의 접촉저항 감소를 위한 hot-

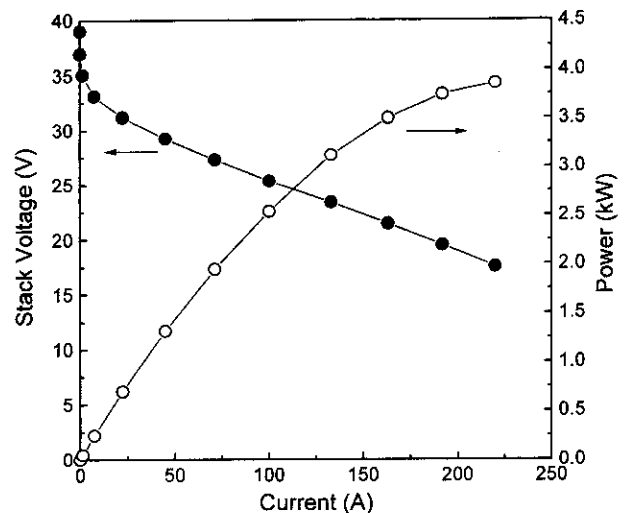


Fig. 3. Performance of the 39-cell stack; $T_c=75^\circ\text{C}$, $T_f=80^\circ\text{C}$, $T_o=85^\circ\text{C}$, $U_f=0.5$, $U_o=0.25$, and $P=1$ atm.

pressing 조건 개선, 분리판 유로 형태 최적화 및 체결압력 조절 등을 통해 해결될 수 있을 것으로 판단된다.

3-2. 스택

3-2-1. 초기 성능

스택의 각 전압과 전류밀도 조건에서 수소 및 산소의 이용률이 각각 0.5와 0.25가 되도록 반응 가스의 공급 유속을 일정하게 유지하였을 경우 스택의 전류-전압 관계를 Fig. 3에 도시하였다. 스택의 성능은 전지 온도가 75°C 에 도달하여 24시간 운전한 후 측정하였다. 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 39개의 단위전지로 이루어진 스택의 개회로전압(OCV)은 39.04 V 였으며 27.3 V 에서의 전류는 71.3 A (357 mA/cm^2), 출력은 1.95 W ($0.25\text{ W/cm}^2/\text{cell}$)였다. 부하를 더욱 증가시킬 경우 23.4 V 에서는 133.2 A (666 mA/cm^2), 3.12 kW ($0.40\text{ W/cm}^2/\text{cell}$)를 얻었으며 17.5 V 에서는 220.0 A ($1,100\text{ mA/cm}^2$), 3.86 kW ($0.50\text{ W/cm}^2/\text{cell}$)로 나타났다.

스택에서 각 단위전지의 평균 개회로 전압은 1.00 V 였다. 이 값은 같은 조건에서 수행된 25 cm^2 단위전지의 개회로 전압 1.02 V 보다는 20 mV 정도 낮고 Nernst 식으로부터 구한 이론값 1.23 V 보다는 230 mV 낮

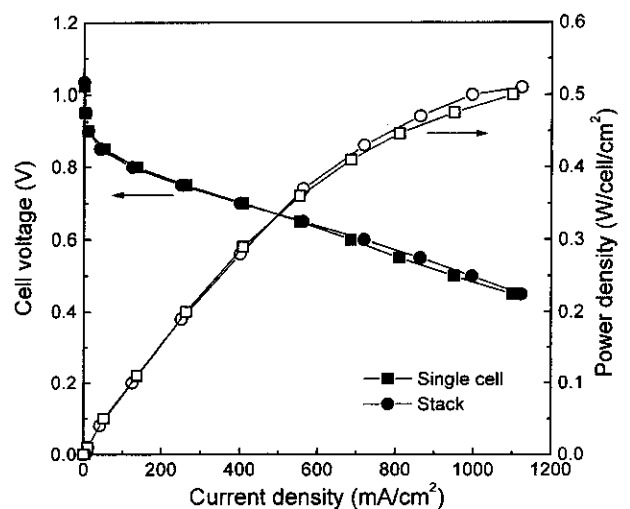


Fig. 4. Performance comparison between the single cell and the average unit cell of the 39-cell stack; $T_c=75^\circ\text{C}$, $T_f=80^\circ\text{C}$, $T_o=85^\circ\text{C}$, $U_f=0.5$, $U_o=0.25$, and $P=1$ atm.

은 값이다. 실제 OCV가 이론 값보다 낮은 것은 PEMFC의 일반적인 현상이라고 할 수 있지만 소형 단위전지보다 20 mV 낮은 것은 스택 조립 과정에서의 이상으로 약간의 gas crossover가 발생한 것으로 생각된다.

3-2-2. 단위전지 성능과의 비교

스택에서의 각 단위전지의 평균 성능을 동일한 면적을 가진 단위전지의 성능과 비교한 것을 Fig. 4에 도시하였다. 90시간 연속 운전한 후 스택의 OCV는 40.35 V(1.03 V/cell)였으며 27.3 V(0.7 V/cell)에서의 전류는 80.1 A(401 mA/cm²), 출력은 2.19 kW(0.28 W/cm²/cell)로써 27.3 V에서의 스택 성능이 초기 성능에 비하여 12% 정도 증가하였다. 부하를 증가시킬 경우 전류와 출력은 각각 23.4 V(0.6 V/cell)에서 143.9 A(720 mA/cm²) 및 3.37 kW(0.43 W/cm²/cell), 17.55 V(0.45 V/cell)에서 224.7 A(1,124 mA/cm²) 및 3.94 kW(0.51 W/cm²/cell)로 나타나 스택의 평균 단위전지 성능이 단위전지 1개를 운전했을 때의 성능과 거의 차이가 없음을 볼 수 있다. 한편 milliohm-meter로 측정된 스택의 총 접촉저항은 47.5 mΩ으로서 스택 내 단위전지의 평균 접촉저항은 1.22 mΩ으로 계산되었으며 이는 200 cm² 단위전지의 접촉저항 범위인 1.0-1.6 mΩ 내에 들어가는 것으로 나타났다. 이와 같은 사실들은 단위전지를 39장 적층할 때 적층에 의한 성능감소가 없었음을 의미한다. 즉 스택 내에서 각 단위전지로의 반응가스 공급, 생성물의 배출, 스택의 온도 제어, 적층 등이 적절히 이루어졌음을 알 수 있다. 이상의 결과로부터 수 kW급 스택제작에 필요한 적층의 기본 기술은 일정 수준 확보했다고 생각되며, 스택의 성능을 보다 더 높이기 위해서는 전극 제조 공정 및 분리판 설계의 최적화를 통한 단위전지의 성능개선이 이루어져야 할 것으로 판단된다.

3-2-3. 스택내 단위전지들의 성능 분포

스택내 각 단위전지의 성능을 전류밀도에 따라 Fig. 5에 나타내었다. 이때 단위전지는 산소 입구쪽 단위전지를 1번 단위전지로 명명하였다. 그림을 살펴보면 개회로 전압이 전체 단위전지에서 큰 편차 없이 거의 균일하게 나타남을 볼 수 있다. 그러나 전류밀도가 증가하면 단위전지간의 성능 편차가 증가하고 있음을 알 수 있다. 이것은 적층 및 운전환경 차이가 비가역 분극 전위의 차이로 나타난 것이라 할 수 있다. 적층 상태가 좋지 못한 3번, 7번, 14번, 20번 단위전지의 성능 저하가 특히 심한 것을 볼 수 있다. 그림에 나타난 바와 같이 부하가 걸린 상태 하에서의 전압분포 패턴이 개회로 전압 분포 패턴과 비슷한 점으로 미루어 초기 전지장착 조건이 전지 성능을 결정함을 알 수 있다. 또한, 단위전지의 성능 분포가 지그재그형을 보이며 변화하는 것은 단위전지의 성능이 분리판의 온도에 영향을 받기 때문인 것으로 보인다. 이는 냉각 제

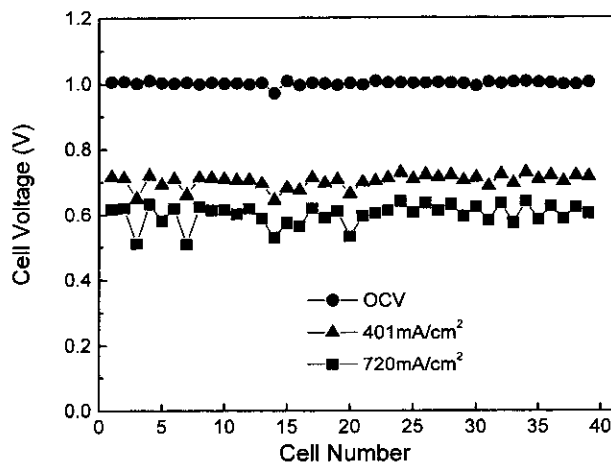


Fig. 5. Distribution of cell voltage in the 39-cell stack.

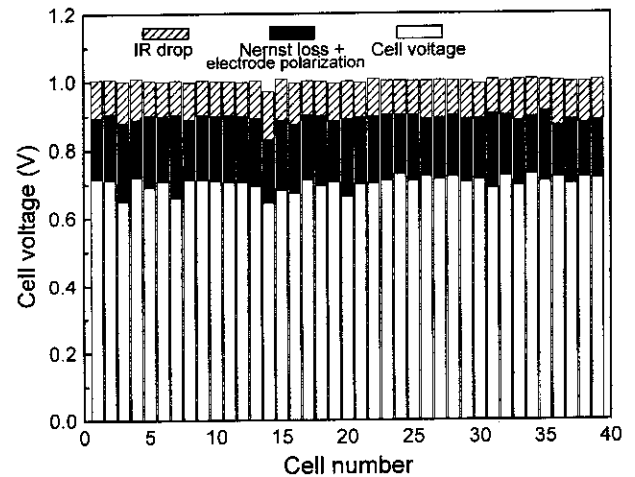


Fig. 6. Voltage loss analysis of the unit cells in the 39-cell stack.

킷이 부착된 분리판과 부착되지 않은 분리판이 번갈아 배치되어 있기 때문에 스택의 온도 분포(Fig. 8참조) 역시 지그재그형을 보이는 것으로부터 유추할 수 있다.

3-2-4. 전압손실 요인

Fig. 6은 스택전압이 27.3 V, 전류밀도가 401 mA/cm²인 조건에서 각 단위전지에 대한 전압 손실을 계산하여 도시한 것이다. 스택의 평균 전압 0.7 V/cell, 부하 401 mA/cm²에서의 전압손실(401 mA/cm²에서의 전압과 OCV와의 차이)은 평균 0.33 V로 이때의 전압손실 요인을 살펴보면 다음과 같다.

첫째, Nernst 손실이다. 연료전지에 도입되는 반응가스는 전지에 도입되어 전기화학 반응을 일으켜 소모되며, 전기화학 반응결과 물이 생성되므로 전지의 입구쪽과 출구쪽에서의 가스 조성이 동일하지 않다. 이로 인하여 전지의 성능은 동일 전지내에서도 국부적인 위치에 따라 달라진다. 따라서 실제 전지의 성능은 전지 입구가스의 조성을 기준으로 계산한 성능에 비하여 감소한다. 이와 같은 현상을 Nernst 손실이라고 하며, 이는 연료 이용율에 따라 달라진다. 본 실험의 경우 순수 산소와 수소를 사용하기 때문에 Nernst 손실은 거의 없는 것으로 추정된다.

둘째, 스택 내부 저항에 의한 손실이다. Fig. 7에 milliohm-meter로 측정된 스택내 각 단위전지의 내부저항 값을 도시하였다. 스택의 전체 내부

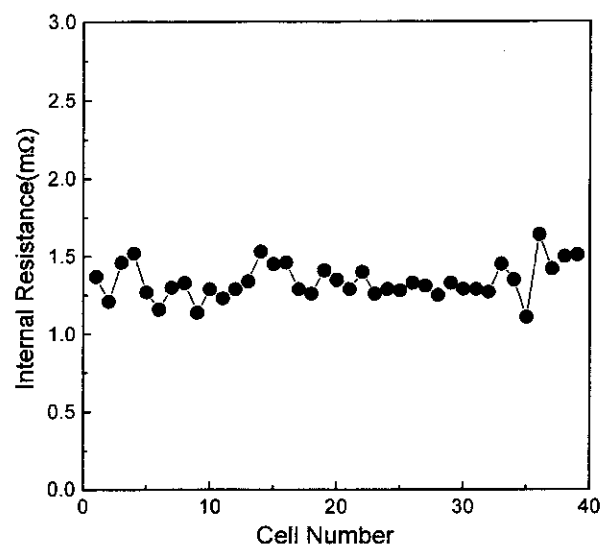


Fig. 7. Distribution of internal resistance in the 39-cell stack at OCV condition.

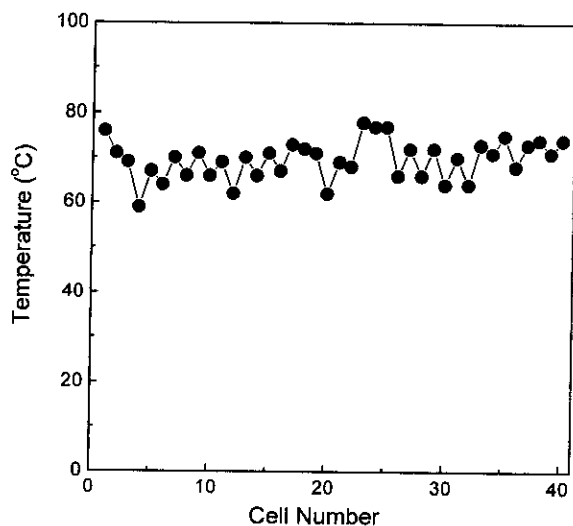


Fig. 8. Distribution of cell temperature in the 39-cell stack at 148 A(740 mA/cm²) and 23.4 V(0.6 V/cell).

저항은 47.5 mΩ이고, 단위전지의 평균 내부저항은 1.22 mΩ이므로, 0.7 V/cell, 401 mA/cm² 부하에서 스택의 내부저항에 의한 전압 손실은 평균 104 mV/cell로 계산된다. 각 단위전지에서의 내부 저항에 의한 전압 손실은 Fig. 6에 도시하였다. 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 내부 저항에 의한 전압 손실은 39개 단위전지 사이에 큰 차이가 없음을 알 수 있다.

셋째, 전극의 분극 저항에 의한 손실이다. 330 mV 중에서 내부 저항에 의한 손실을 뺀 나머지 226 mV/cell은 대부분 전극 자체의 분극 저항에 기인한 것으로 생각된다. 따라서 전지의 성능을 높이기 위해서는 전극 제조 공정의 개선을 통한 전극 자체의 분극 저항을 줄여야 할 것이다.

성능이 특히 낮게 나타난 단위전지인 3, 7, 14, 20의 성능저하 원인을 살펴보면 3, 7, 20번 단위전지는 다른 단위전지에 비하여 전극의 분극 손실이 크게 나타난 것으로 보아 전극제조상의 문제점이 있었음을 알 수 있다. 14번 단위전지는 전극의 분극 저항은 그리 크지 않지만 개회로 전압이 특별히 낮은 점으로 보아 반응가스의 crossover가 발생한 것으로 보인다.

3-2-5. 온도 분포

Fig. 8은 스택내 각 분리판 중심부의 온도 분포를 나타낸 것이다. 스택 운전 시 전기화학 반응에 의한 반응열을 효과적으로 제거하여 스택 운전 온도를 75°C로 유지하기 위해 MEA 2개당 냉각판 1개를 설치하였다. 스택에 부하를 가하면 스택 내부에서의 전기화학 반응에 의하여 열이 발생하며 이로 인하여 각 단위전지에서의 온도가 상승하게 되는데, 스택에 720 mA/cm²의 부하를 가할 경우 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 단위전지의 온도가 최고 78°C까지 상승하였으며, 온도가 가장 낮은 부분과는 19°C 정도의 차이를 보였다. 이는 냉각판 중 일부에는 냉각수가 원활하게 공급되지 않아 효과적으로 반응열을 제거하지 못해 주위에 있는 단위전지들의 온도가 높게 나타났으며, 냉각수가 원활하게 공급된 냉각판의 단위전지들에서는 온도가 크게 낮아졌기 때문이다. 특히 24번 분리판의 경우 냉각이 적절히 이루어지지 않음으로 해서 주위의 분리판 역시 온도가 상승되었음을 볼 수 있다. 스택의 온도는 75°C 유지를 목표로 하였으나 대체로 70에서 75°C 사이의 분포를 보였다. 한편 1번 단위전지 쪽에서 냉각수가 도입되기 때문에 단위전지의 온도는 출구 쪽인 40번 단위전지로 갈수록 점차 상승하고 있음을 볼 수 있다.

앞서 논의한 바와 같이 스택의 온도 분포는 지그재그형을 나타내고 있으며, 스택의 전압분포도 이와 유사한 형태를 보이는 것으로 보아 단위전지의 온도가 단위전지의 성능에 직접적인 영향을 미치고 있음을 알 수 있다.

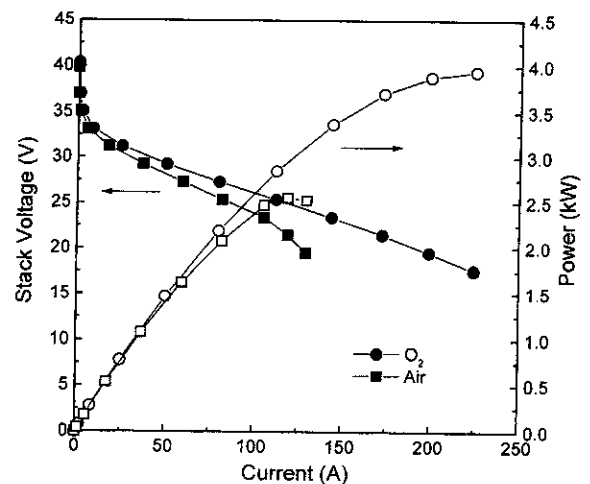
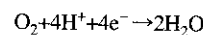


Fig. 9. Effect of oxidant on the 39-cell stack performance.

이상의 실험결과로부터 스택에 있어서는 전기화학적 반응열을 효과적으로 제거하는 것이 매우 중요하며, 이는 스택의 설계에 있어서 매우 중요한 인자중의 하나임을 알 수 있다.

3-2-6. Oxygen gain

고분자 전해질 연료전지의 산소극에서는 다음과 같은 전기화학 반응이 일어난다.



이 반응에서 생성된 물과 수소 이온의 활동도가 1이라고 가정하면 산소극의 평형전위는 Nernst식으로부터 다음과 같이 표현된다.

$$E(\text{O}_2) = E_0 + \frac{RT}{4F} \ln P_{\text{O}_2}$$

여기서 E는 평형 기전력, E₀는 표준 기전력, R은 기체상수, T는 반응 온도이고 P는 가스의 분압을 나타낸다. 이 식에서 볼 수 있는 바와 같이 평형 기전력은 산소의 분압이 증가할수록 증가한다. 따라서 스택에 공급되는 산화제를 산소에서 공기로 바꾸면 산소의 분압 감소로 인하여 스택의 성능이 감소된다.

스택에 공급되는 산화제를 순수 산소에서 같은 양의 공기로 교체하였을 때의 전류-전압곡선과 출력을 Fig. 9에 나타냈다. 이때의 가스 이용률은 전류밀도 720 mA/cm²에서 cathode 및 anode 각각 0.25와 0.5로 하였다. 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 23.4 V에서의 성능은 순수 산소일 때의 143.9 A에 비하여 공기의 경우 105.7 A로써 약 26.6% 감소하였다. 일반적으로 고온에서 작동되는 연료전지는 전류-전압 관계가 직선이며 부하에 따른 oxygen gain의 변화도 크지 않다. 그러나 고분자 전해질 연료전지의 경우 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 전류-전압 곡선의 기울기차가 커서 부하가 증가함에 따라 oxygen gain이 급격하게 증가하고 있음을 알 수 있다. 따라서 스택의 성능을 높이려면 산소의 분압을 높이는 방안 즉 가압 운전이 요구됨을 알 수 있다.

3-2-7. 스택의 연속 운전

스택의 운전 시간에 따른 성능 변화를 조사하기 위하여 스택 운전 중간 중간에 초기 운전조건과 동일한 조건에서 측정된 스택 성능 측정 결과를 Fig. 10에 나타내었다. 그림에서 스택의 성능은 스택의 전압이 27.3 V(0.7 V/cell)일 때의 스택 전류를 운전시간에 따라 도시한 것이다. 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 개회로 전압과 전류가 초기 약 90시간 까지 서서히 상승한 후 최대값을 보였다. 이는 전해질막이 점차 수화되면서 수소이온의 전달 속도가 점차 증가하기 때문으로 여겨진다. 운전 시작 후 90시간 연속 운전을 수행하였으나, 실험실 사정으로 인하여

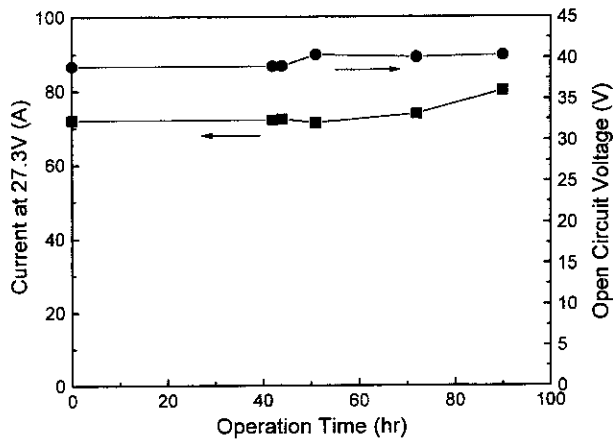


Fig. 10. Performance of the 39-cell stack during continuous operation.

연속 운전을 중단하고 가끔씩 시험 운전만 하고 있는 상태며, 최초 운전 시작 후 4개월이 지난 현재까지 뚜렷한 성능저하 현상은 보이지 않고 있다. 90시간 연속 운전 후 스택의 OCV는 40.3 V(1.03 V/cell)였으며 27.3 V(0.7 V/cell)에서의 전류는 80.1 A(401 mA/cm²), 출력은 2.19 kW(0.28 W/cm²/cell)였다. 부하를 증가시킬 경우 전류와 출력은 각각 23.4 V(0.6 V/cell)에서 143.9 A(720 mA/cm²) 및 3.37 kW(0.43 W/cm²/cell), 17.5 V(0.45 V/cell)에서 224.7 A(1,124 mA/cm²) 및 3.94 kW(0.51 W/cm²/cell)로 나타났다. 최대 출력 3.94 kW를 기준으로 하면 스택의 단위부피당 출력밀도는 0.17 kW/l였다.

4. 결 론

고분자전해질 연료전지의 전극 및 MEA의 scale-up이 단위전지 성능에 미치는 영향을 고찰한 후 200 cm² 단위전지를 제조하여 상압 운전한 결과 0.6 V일 때 0.36 W/cm²의 출력밀도를 얻었으며, 최고 출력밀도는 전지전압이 0.45 V일 때 0.51 W/cm²였다.

전극 유효면적이 200 cm²인 단위전지를 39단 적층하여 항류흐름형 스택을 제작하고, 성능 측정 시스템을 구성하여 상압으로 운전한 결과, anode 가스로 가습된 수소를 사용하고 cathode 가스로 가습된 순수 산소를 사용하였을 경우 개회로전압(OCV)은 40.4 V였으며 27.3 V(0.7 V/cell)에서의 전류는 80.1 A(401 mA/cm²), 출력은 2.19 kW(0.28 W/cm²/

cell)였다. 부하를 증가시킬 경우 전류와 출력은 각각 23.4 V(0.6 V/cell)에서 143.9 A(720 mA/cm²) 및 3.37 kW(0.43 W/cm²/cell), 17.5 V(0.45 V/cell)에서 224.7 A(1,124 mA/cm²) 및 3.94 kW(0.51 W/cm²/cell)로 나타났으며 이때 최대 출력 3.94 kW를 기준으로 하면 스택의 단위부피당 출력밀도는 0.17 kW/l였다. 한편 수소/공기의 경우에는 최대 2.53 kW의 출력을 얻을 수 있었다.

그러나 스택의 성능을 좀더 향상시키기 위해서는 균일하고 높은 성능을 나타내는 단위전지의 제작 및 스택 운전 환경의 차이를 최소화하는 기술의 개발이 필요하며, 또한 효율적인 냉각 방식의 개발도 요구된다.

감 사

본 연구는 산업자원부와 과학기술부가 주관하는 G7 차세대자동차 기술개발사업의 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. Blomen, L. J. M. J. and Mugerwa, M. N.: "Fuel Cell Systems," Plenum Press, New York(1993).
2. Kordesch, K. and Simader, G.: "Fuel Cells and Their Applications," VCH, Weinheim, Germany(1996).
3. Oh, I.-H., Ha, H. Y. and Lee, T.-H.: *Chemical Industry and Technology*, **16**, 431(1998).
4. Dircks, K.: 1998 Fuel Cell Seminar Abstracts, 726(1998).
5. Meyer, A. L., Gorman, M. E. and Callaghan V. M.: 1998 Fuel Cell Seminar Abstracts, 722(1998).
6. Takasu, K.: Proceedings of the Fuel Cell Technology-Producing Green Cars at a Profit, London(1998).
7. Marcenaro, B. G. and Federici, F.: 1996 Fuel Cell Seminar Abstracts, 304(1996).
8. Koh, Y. T.: "Development of 1 kW Class Solid Polymer Electrolyte Fuel Cell Stack," MOTIE Report 9411401-354FGI(1995).
9. Ahn, S.-Y., Oh, I.-H., Ha, H. Y., Choi, H.-J., Cho, S.-A., Hong, S.-A. and Lim, T.-W.: *Theories and Applications of Chem. Eng.*, **5**, 3393(1999).
10. Chun, Y.-G., Peck, D.-H., Yang, T.-H., Kim, C.-S. and Shin, D. R.: *Theories and Applications of Chem. Eng.*, **5**, 3389(1999).