

전기화학 수소 압축기 성능 및 기계적 특성에 대한 셀 디자인 변수의 영향 조사

심규동* · 이재승* · 윤수빈* · 주현철*†

Influence of Key Design Variables on the Performance and Mechanical Behavior of an Electrochemical Hydrogen Compressor

Gyudong Sim*, Jaeseung Lee*, Soobin Yoon*, Hyunchul Ju*†

Key Words : *Electrochemical hydrogen compressor*(전기화학 수소 압축기), *Numerical model*(수치 모델), *Three-dimensional simulation*
(3D 시뮬레이션), *Water management*(물 관리), *Cell deformation*(셀 변형)

ABSTRACT

An electrochemical hydrogen compressor (EHC) is considered as promising technology for hydrogen compression. In this study, the influence of cell design variables on performance and mechanical behavior was numerically investigated for efficient and reliable operations of EHC. The distributions of stress and water concentration were examined by coupling computational fluid dynamics (CFD) and finite element method (FEM) methodology. First, the EHC model is validated against the experimental data with different Nafion membranes of N115, N117, and NR212. In general, the gas diffusion layer (GDL) intrusion toward the low-pressure side (anode) is observed induced by cell assembly and pressure gradient between the anode and cathode. While the stress level tends to be decreased with increase of the membrane, GDL thickness. Regarding the cell performance, the dehydration which is critical issue for EHC operation, is mainly affected by ohmic potential due to the proton transport through the membrane. In previous studies, specific causes of the anode dehydration issue and structural problems in the cell due to pressure differences in the electrochemical hydrogen compressor (EHC) were not well elucidated. Through this research, using the computational science approach, we have identified and analyzed these underlying causes and conducted simulations to assess the performance and structural stability of the cell based on various cell design factors required for design optimization and solution. Particularly, the simulations also show that when common GDL materials such as carbon paper, carbon cloth, and carbon felt are employed, breaking of GDL could not be avoided with high hydrogen compression ratio (e.g., 100), which clearly indicates that the structure strength and resistance of GDL should be improved.

1. 서 론

화석 연료의 남용으로 인한 기후 변화에 대응하기 위해 전 세계적으로 많은 연구와 노력이 이루어지고 있다. 수소는 이 위기를 극복하기 위한 대체 에너지로 매우 효율적이며 액체 또는 가스 상태로 쉽게 저장 및 운반할 수 있는 장점을 가지고 있다. 그러나 수소를 액체로 저장할 경우 많은 양의 수소를 최소한의 부피로 저장할 수 있으나, 고순도의 수소로 압

축할수록 기계적인 방법보다 비용이 많이 들고 효율이 떨어진다. 현재 가장 일반적으로 사용되는 수소 압축 저장 방법은 기계적인 방법으로 내구성, 소음, 수소의 오염 등의 단점이 있다. 반면에 고분자전해질막을 이용한 전기화학 수소압축기는 더 적은 에너지를 화학적인 방법을 통해 수소 가스를 압축하는 것이 더 효율적이고 선호되는 방법이라고 할 수 있다^[1,2]. 최근에는 전기화학수소압축기에 대한 많은 연구가 수행되고 있으며, 높은 압축 비율과 우수한 성능을 달성하기

* 인하대학교(Department of Mechanical Engineering, Inha University)

† 교신저자, E-mail : hcju@inha.ac.kr

2023 한국유체기계학회 하계학술대회 발표 논문, 2023년 7월 5일~7월 7일, 평창 알펜시아

The KFSM Journal of Fluid Machinery: Vol. 27, No. 1, February 2024, pp.98~109(Received 14 Jul. 2023; revised 27 Jul. 2023; 10 Aug. 2023; accepted for publication 20 Aug. 2023)

98 한국유체기계학회 논문집: 제27권, 제1호, pp.98~109, 2024(논문접수일자: 2023.07.14, 논문수정일자: 2023.07.27, 2023. 08. 10, 심사완료일자: 2023.08.20)

위해 다양한 분야에서 전기화학수소압축기 시스템에 관한 연구 결과가 보고되고 있다.

전기화학수소압축기 셀의 성능을 향상시키기 위해서는 수분 관리가 매우 중요한 요소 중 하나이다. 고분자 전해질막 연료전지(PEMFC, Polymer Electrolyte Membrane Fuel cell)와 마찬가지로 전해질 막은 수소 이온의 전도도를 높이기 위해 수화되어야 한다^[3]. 그러나 고분자 전해질막 연료전지와 달리 전기화학수소압축기 셀에서는 환원 반응으로 인해 물이 생성되지 않기 때문에, 수소가 애노드로 유입되는 물을 통해 막을 수화시키는 것이 중요하다. Zou 등^[4]은 충분한 수분이 공급되지 않을 경우, 전류 밀도의 증가가 막의 탈수를 유발하여 옴 손실(ohmic loss)이 증가한다고 분석했다. 해당 논문에서는 다양한 운전 조건에서 막의 탈수를 완화 하여 전기화학수소압축기 셀의 성능을 향상시키는 시도를 하였으며, 입구 수소 압력이 30 kPa일 때 22의 압축 비율을 달성했다. Hao 등^[5]은 캐소드에 내부 가습기를 사용하는 설계를 고안했으며, 전기화학수소압축기를 2 MPa까지 작동시키고, 전기화학 임피던스 분광법을 통해 주된 초과전위막 저항에 기인함을 보였다.

특히 전기화학수소압축기 셀의 경우 셀 내부에서 큰 압력 경사가 발생하기 때문에 구성 요소의 기계적 특성과 구조적 안정성이 중요한 요소가 된다. 셀을 장기간 고압으로 운전할 때, 카본지(Carbon paper)와 탄소 섬유에서 전단이 발생하기 때문에 카본 펠트는 구조 강도와 내성 측면에서 안정성 면에서 더 우수한 성능을 가진다^[6]. Rohland 등^[7]은 고압 압축 조건에서 막전극접합체(MEA, Membrane electrode assembly)의 변형을 막기 위해 유연한 특수 그래파이트 시트와 금속 펠트를 각각 캐소드 및 애노드 유로에 사용하는 것을 제안했다. 수소를 0.1~4.3 MPa로 압축하고 0.04~5.7N·m³/h의 유속을 생성했다. Sdanghi 등^[8]은 카본지 대신 두꺼운 다공성 티타늄 층(PTL, Porous titanium layer)을 애노드에 사용하여 전해질 막을 압력 차이로부터 보호했다. 또한, 그들은 실험 연구와 함께 가상 2차원 모델을 개발하여 전기화학수소압축기의 효율성을 향상시키는 물리적 매개변수를 추정했다.

효율적인 전기화학수소압축기 운전을 위해 수소 환원 반응 중에는 물이 생성되지 않기 때문에 전해질 탈수화 방지는 중요한 도전 과제로 부각된다. 게다가, 신뢰성 있고 장기간의 운전을 위해 전기화학수소압축기 셀 및 스택 구조는 애노드와 캐소드 사이의 수소 압력 차이에 견딜 수 있도록 적절하게 설계되어야 한다. 기존의 연구들에서는 전기화학 수소 압축기의 애노드 탈수 문제와 압력 차이로 인한 셀의 구조적인 문제에 대한 구체적인 원인들의 규명이 부족하다. 이번 연구에서는 수치해석을 통해 해당 원인을 규명하고 해결 방안을 위한 설계 최적화에 필요한 여러 셀 디자인 요소들에 따른 셀의 성능 및 구조적인 안정성에 대한 시뮬레이션을 수

행하였다. 본 연구에서는 이전 연구에서 개발한 3차원 전기화학수소압축기 모델을 사용하여 전기화학수소압축기의 핵심 구성 요소 설계가 셀 성능과 기계적 거동에 미치는 영향을 조사했다^[9]. 이 모델은 유한요소법(FEM, Finite element method) 기반의 고체역학 모델과 전산유체역학 기반의 유체 모델을 포함하여 전기화학적 및 기계적 행동을 정확하게 포착하여 전기화학적 수소 압축 과정 중 전기화학수소압축기 셀의 성능과 여러 특성들에 대해 해석한다. 매개변수 연구의 초점은 다양한 수소 압축 비율에서 기체확산층(GDL, Gas diffusion layer), 전해질막, 및 유로의 차원적 영향을 분석하는 데에 놓여 있다. 특히, 전류 밀도, 물질 농도, 기계적 응력 및 구성 요소 변형의 다차원 분포는 주요 물리 현상을 이해하고 셀 디자인 및 운전 조건을 최적화하기 위해 사용된다.

2. 수치 모델

Fig. 1은 전기화학수소압축기 셀 내의 전기화학 반응과 물질 이동의 개략적인 도표를 보여준다. 전체적인 계산 도메인에서 모델은 분리판(BPs, Bipolar plate), 가스 채널(GCs, Gas channel), 가스 확산층(GDLs), 촉매층(Cs, Catalyst layer) 및 고분자 전해질 막을 고려하며, Fig. 2에 표시된 대

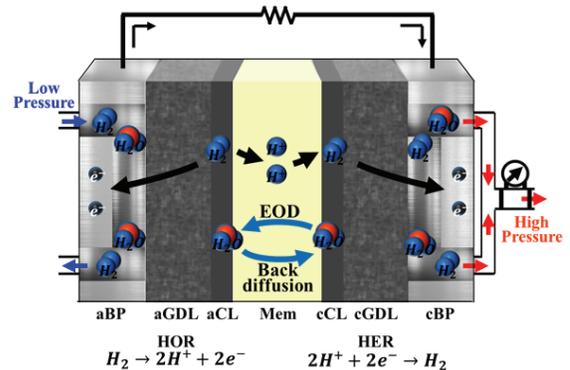


Fig. 1 Schematic diagram of an EHC cell with major components and key transport processes

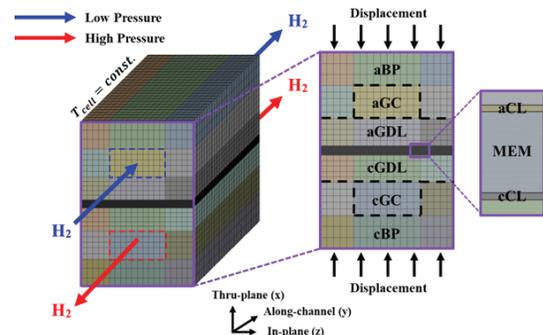


Fig. 2 computational domain and mesh configuration of an EHC cell

로 직선 채널을 가진 단일 셀에 적용된다. 수소 산화 반응 (HOR, Hydrongen oxidation reaction)과 수소 환원 반응 (HER, Hydrogen evolution reaction)을 통해 전기화학 반응 및 물질 이동을 고려하기 위해 기계적 행동과 결합된 전산유체역학 기반 모델을 사용한다. 다음은 모델 개발 시 사용된 가정 사항이며, 2.1 절에서 설명되어 있다.

2.1 모델 가정

- (1) 수소의 유동은 속도와 압력 강하 때문에 압축성이 없고 정상유동이라고 가정한다.
- (2) 전기화학수소압축기 셀의 다공성 구성 요소는 등방성으로 가정되며 유효 다공성과 투과성으로 특성화된다.
- (3) 실험실 규모의 전기화학수소압축기 셀로 가정하여 등온으로 간주한다.
- (4) 모든 가스 혼합물은 이상 기체 법칙으로 가정한다.
- (5) 중력 효과는 무시할 만큼 작다.
- (6) 모든 계면 표면에서 전자 접촉 저항은 무시할 만큼 작다.

2.2 전기화학수소압축기 전기화학 반응

전기화학수소압축기 모델은 질량, 운동량, 전하 및 개별 물질의 보존 방정식 네 가지로 구성되었다. 이러한 보존 방정식은 전기화학 반응에 기반한 소스/싱크텀과 결합되었다. 소스/싱크텀은 수소 산화 반응 및 수소 환원 반응을 위한 버틀러 볼머 방정식과 관련이 있다. 수소 가스는 애노드 촉매층에서 산화되고 캐소드 촉매층에서 환원되며 다음 전기화학 반응에 따른다.

At the anode CL



At the cathode CL



방정식에서, E_a^0 와 E_c^0 는 각각 표준 상태 조건에서 수소 산화 반응과 수소 발생 반응의 열역학적 평형 전위를 나타낸다.

수소 산화 반응과 수소 환원 반응의 전달 전류 밀도인 j 의 표현은 버틀러 볼머 방정식에 기반하여 유도된다.

HOR at the anode CL

$$j = a_a i_{0,a} \left[\left(\frac{C_{H_2}}{C_{H_2}^{ref}} \right) \exp \left(\frac{\alpha_a F \eta_a}{RT} \right) - \exp \left(\frac{-\alpha_c F \eta_a}{RT} \right) \right] \quad (3)$$

HER at the cathode CL

$$j = a_c i_{0,c} \left[\left(\frac{C_{H_2}}{C_{H_2}^{ref}} \right) \exp \left(\frac{\alpha_a F \eta_c}{RT} \right) - \exp \left(\frac{-\alpha_c F \eta_c}{RT} \right) \right] \quad (4)$$

식 (3)과 (4)에서, α_a 와 α_c 는 각각 개별 반쪽 전지 반응 (Half-cell reaction)에 대한 애노드 전달 계수를 나타낸다. 또한, a_a 와 a_c 는 각각 애노드 및 캐소드 촉매층의 실효 활성화 면적(Specific area)을 나타낸다. 실효 활성화 면적은 다음과 같이 표현될 수 있다.

$$a = \frac{a_{ECSA} L_{Pt}}{\delta_{CL}} \quad (5)$$

여기서 a_{ECSA} , L_{Pt} , 그리고 δ_{CL} 은 각각 전기화학적 활성화 표면적, 촉매층에서의 Pt의 Loading량, 그리고 촉매층의 두께를 나타낸다. a_{ECSA} 와 δ_{CL} 은 다음과 같이 표현될 수 있다.

$$a_{ECSA} = \frac{3}{r_{Pt} \rho_{Pt}} \quad (6)$$

$$\delta_{CL} = \left[\frac{(I/C) \left(\frac{\rho_c}{\rho_e} \right) \left(\frac{1}{\rho_c wt\%} \right) + \left(\frac{1}{\rho_{PT}} + \frac{1}{\rho_c wt\%} \right)}{1 - \varepsilon_{CL}} \right] L_{Pt} \quad (7)$$

식 (3)과 (4)에서의 $i_{0,a}$ 와 $i_{0,c}$ 는 각각 애노드 촉매층에서의 수소 산화 반응과 캐소드 촉매층에서의 수소 환원 반응의 교환 전류 밀도를 나타내며, 수정된 아레니우스 형태로 온도와 압력의 함수로 표현될 수 있다^[10]. 이는 다음과 같다.

$$i_0 = i_0^{ref} \left(\frac{P}{P_{ref}} \right)^\gamma \exp \left[-\frac{E_a}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ref}} \right) \right] \quad (8)$$

Table 1에는 물리화학적, 운동학적 및 운반 특성을 Table 2는 촉매층 사양(L_{Pt} , I/C, wt.% 등)을 나열했다. 위 식에서 E_a 는 활성화 에너지이며, 식 (3)과 (4)에서 수소 산화 반응에 대한 표면 과전위인 η_a 와 수소 환원 반응에 대한 표면 과전위인 η_c 는 다음과 같이 표현될 수 있다.

HOR at the anode CL

$$\eta_a = \phi_s - \phi_e - E_a \quad (9)$$

HER at the cathode CL

$$\eta_c = \phi_s - \phi_e - E_c \quad (10)$$

여기서, ϕ_s 와 ϕ_e 는 각각 고체상의 전자 전위와 전해질 상의 이온 전위를 나타낸다. E_a 와 E_c 는 각각 애노드 촉매층에서의 수소 산화 반응과 캐소드 촉매층에서의 수소 환원 반응

Table 1 Physiochemical, kinetic, and transport properties

Descriptions	Value	Ref.
Radius of Pt particle, r_{pt}	5 nm	31
Density of a carbon particle, ρ_c	1.95 g/cm ³	18
Density of ionomer, ρ_e	1.9 g/cm ³	18
Density of Pt particle, ρ_{pt}	21.45 g/cm ³	18
Transfer coefficient of HOR/HER, $\alpha_a = \alpha_c$	1.0	19
Reference exchange current density for HOR/HER at 80°C and 100kPa, i_0^{ref}	0.52 A/cm ²	20
Activation energy for HOR/HER, E_a	29,800 J/mol	20
Entropy changes for HOR/HER at 25°C, $\Delta s_a/\Delta s_c$	0.104/ -0.104 J/mol • K	21
Permeability of GDL/CL/mem, $K_{GDL}/K_{CL}/K_{mem}$	$1.0 \times 10^{-12} / 1.0 \times 10^{-13} / 1.0 \times 10^{-13} m^2$	19
Viscosity coefficient of hydrogen at 273K, μ_{0,H_2}	$8.411 \times 10^{-6} kg/m \cdot s$	23
Viscosity coefficient of water vapor at 350K, μ_{0,H_2O}	$1.12 \times 10^{-5} kg/m \cdot s$	23
Exponent value in hydrogen viscosity relation of Eq.(21), m	0.68	23
Exponent value in water vapor viscosity relation of Eq.(21), m	1.15	23
Critical temperature of hydrogen, T_{c,H_2}	33.3 K	24
Critical temperature of water vapor, T_{c,H_2O}	647.3 K	24
Critical pressure of hydrogen, P_{c,H_2}	12.80 atm	24
Critical pressure of water vapor, P_{c,H_2O}	217.5 atm	24
Porosity of GDLs(JMP40, JNTG co., Korea), ε_{GDL}	0.7	25
Porosity of CLs, ε_{CL}	0.65	Assumed
Porosity of titanium GDLs (P65, Synthes GmbH., Switzerland), $\varepsilon_{GDL, Ti}$	0.639	26
Electrical conductivity of BPs (SUS 304), σ_{BP}	$1.37 \times 10^6 s/m$	27
Electrical conductivity of GDLs (JMP40, JNTG co., Korea), σ_{GDL}	2200 s/m	25
Electrical conductivity of CLs, σ_{CL}	5000 s/m	19
Density of BPs (SUS 304), ρ_{BP}	7900 kg/m ³	28
Density of GDLs, ρ_{GDL}	450 kg/m ³	17
Density of CLs, ρ_{CL}	1000 kg/m ³	29
Density of membrane (N115, Dupont, USA), ρ_{mem}	1980 kg/m ³	22
Density of titanium GDLs, $\rho_{GDL, Ti}$	1590 kg/m ³	26
Young's modulus of BPs (SUS 304), E_{BP}	192 GPa	28-
Young's modulus of GDLs, E_{GDL}	6.3 MPa	17
Young's modulus of CLs, E_{CL}	250 MPa	29
Young's modulus of membrane (N115, Dupont, USA), E_{mem}	96.5 MPa	22
Young's modulus of titanium GDLs, $E_{GDL, Ti}$	10,400 MPa	26
Poisson's ratio of BPs (SUS 304), ν_{BP}	0.33	28
Poisson's ratio of GDLs, ν_{GDL}	0.09	17
Poisson's ratio of CLs, ν_{CL}	0.25	29
Poisson's ratio of membrane (N115, Dupont, USA), ν_{mem}	0.25	30
Poisson's ratio of titanium GDLs, $\nu_{GDL, Ti}$	0.365	26

의 열역학적 평형 전위를 나타내며, 다음과 같이 온도에 대한 함수로 표현될 수 있다.

HOR at the anode CL

$$E_a = E_a^0 + \frac{\Delta s_a}{2F} (T - T_0) - \frac{RT}{2F} \ln P_a \quad (11)$$

Table 2 Catalyst layer specification, cell dimensions, and operation conditions

Descriptions	Value
Pt loading, L_{pt}	0.4mg/cm ²
Ionomer carbon ratio, I/C	0.7
Weight percentage of Pt/C	0.7
Thickness of BPs, δ_{BP}	1mm
thickness of GDLs (JMP40, TNTG co, Korea), δ_{GDL}	410 μ m
Thickness of CLs, δ_{CL}	15 μ m
Thickness of membrane (N115, Dupont, USA), δ_{mem}	127 μ m
Thickness of membrane (NR212, Dupont, USA), δ_{mem}	50.8 μ m
Thickness of membrane (N117, Dupont, USA), δ_{mem}	183 μ m
Flow gas channel width, W_{ch}	0.5mm
Flow gas channel height, h_{ch}	1mm
Cell height	2mm
Cell length	60mm
Anode outlet pressure, $P_{a,out}$	1bar
Cathode outlet pressure, $P_{c,out}$	10bar
Cell temperature, T_{cell}	50°C
Constant inlet flow rate, Q_{in}	3.33 $\times 10^{-6}$ m ³ /s

HER at the cathode CL

$$E_c = E_c^0 + \frac{\Delta S_c}{2F}(T - T_0) - \frac{RT}{2F} \ln P_c \quad (12)$$

네른스트(Nernst) 전압은 식 (13)에 의해 계산된다.

$$E_{nernst} = E_c - E_a = -\frac{RT}{2F} \ln \frac{P_c}{P_a} \quad (13)$$

ΔS_a 와 ΔS_c 는 각각 애노드 촉매층에서의 수소 산화 반응과 캐소드 촉매층에서의 수소 환원 반응 반응 동안의 엔트로피 변화를 나타낸다.

2.3 지배 방정식과 소스텀

3D 전기화학수소압축기 모델은 질량, 운동량, 물질 및 전하 보존의 원리에 따라 구성되었으며, 2.1절에서 언급된 모델 가정을 고려하였다. 질량 보존 방정식과 운동량 보존 방정식은 다음과 같다.

Mass conservation equation

$$\nabla \cdot (\rho \vec{u}) = S_m \quad (14)$$

Momentum conservation equation

$$\frac{1}{\varepsilon^2} \nabla \cdot (\rho \vec{u} \vec{u}) = -\nabla P + \nabla \cdot \tau + S_u \quad (15)$$

식 (14)에서 ρ , \vec{u} 및 S_m 은 가스 혼합물 밀도, 다공성 매체에서의 표면 속도 및 촉매층에서의 질량 소스텀을 나타낸다. 질량 소스텀은 패러데이 법칙과 전해질 막을 통한 물의 이동에 기반하여 촉매층에서의 질량 소모 및 생성을 설명한다. 가스 혼합물 밀도 및 질량 소스텀은 다음과 같이 표현될 수 있다.

$$\rho = \left(\frac{P}{RT} \right) \frac{1}{\sum_i \frac{m f_i}{MW_i}} \quad (16)$$

$$S_m = -\frac{j}{2F} MW_{H_2} + \left[\nabla \cdot (D_{H_2O}^{mem} \nabla C_{H_2O}^{mem}) - \nabla \cdot \left(\frac{n_d}{F} I \right) \right] MW_{H_2O} \quad (17)$$

식 (15)에서 ε 는 다공성 매질의 다공성을 나타내며, S_u 는 전기화학수소압축기 셀의 다공성 매질을 통한 유동을 나타내는 모멘텀 소스텀이다. S_u 는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$S_u = -\left(\frac{\mu}{K} \right) u \quad (18)$$

여기서 K 는 다공성 요소의 유효 투과율을 나타낸다. 가스 혼합물의 동적 점성도인 μ 는 가스 조성에 따라 변동하며 다음과 같이 계산될 수 있다.

$$\mu = \frac{\sum_i^n x_i \mu_i}{\sum_{j=1}^n x_j \Phi_{ij}} \quad (19)$$

여기서

$$\Phi_{ij} = \frac{1}{\sqrt{8}} \left(1 + \frac{MW_i}{MW_j} \right)^{-0.5} \left[1 + \left(\frac{\mu_i}{\mu_j} \right)^{0.5} \left(\frac{MW_i}{MW_j} \right)^{0.25} \right]^2 \quad (20)$$

$$\mu_i = \mu_{0,i} \left(\frac{T}{T_0} \right)^m \quad (21)$$

화학종 보존 방정식은 전기화학 반응에 의한 종의 소모 및 생성과 전기화학수소압축기 셀 구성 요소에서의 종 운반을 상세하게 설명하는 것을 필요로 한다. 화학종 보존 방정식은 다음과 같이 유도될 수 있다.

$$\nabla \cdot (\vec{u} C_i) = \nabla \cdot (D_i^{eff} \nabla C_i) + S_i \quad (22)$$

식 (22)에서 우변의 첫 번째 항은 피키안(Fickian) 확산 플럭스를 나타낸다. 여기서 D_i^{eff} 는 종 i 의 유효 확산도를 나타낸다. 유효 확산도는 다공성과 투과도의 영향을 고려하기 위해 브리그만(Bruggeman) 상관식을 사용하여 수정하였다. 또한, 종 i 의 기체 확산은 종 j 와 i 의 특성에 의존한다. 여기서 i 는 확산하는 종이고, j 는 확산이 발생하는 종이다^[11]. 이를 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$D_i^{eff} = \begin{cases} D_{ij} & (\text{for gas channel}) \\ \varepsilon^\tau D_{ij} & (\text{for porous media}) \end{cases} \quad (23)$$

$$D_{ij} = a \left(\frac{T}{\sqrt{T_{ci} T_{cj}}} \right)^b \frac{(P_{ci} P_{cj})^{1/3}}{P} (T_{ci} T_{cj})^{5/12} \left(\frac{1}{MW_i} + \frac{1}{MW_j} \right)^{1/2} \quad (24)$$

여기서 a 와 b 는 변수이다. (예: 수소의 경우, $a = 2.745 \times 10^{-4}$, $b = 1.823$. 물의 경우, $a = 2.745 \times 10^{-4}$, $b = 2.334$). T_{ci} , T_{cj} , P_{ci} 및 P_{cj} 는 종 i 와 j 의 임계 온도와 압력을 나타내며, 물의 이동은 가스와 전해질 내에서 이루어진다. 따라서 물의 확산도는 영역별로 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$D_{H_2O}^{eff} = \begin{cases} D_{H_2O} & (\text{for gas channels}) \\ \varepsilon^\tau D_{H_2O} & (\text{for GDLS}) \\ \varepsilon^\tau D_{H_2O} + \varepsilon_e^\tau D_{H_2O}^{mem} \frac{\rho^{mem}}{EW} \frac{RT}{P_{sat}} \frac{d\lambda}{da_w} & (\text{for CLs}) \end{cases} \quad (25)$$

여기서 ε_e 는 촉매층내의 이오노머의 부피 분율이다. 전해질 내부에 $D_{H_2O}^{mem}$ 에서 물의 확산도는 Fuller 등^[12]을 참고했으며, 수분 함량 λ 는 물의 활동도 a_w 의 함수로 다음과 같이 표현된다.

$$\varepsilon_e = (I/C) \frac{\rho_c}{\rho_e} \varepsilon_c \quad (26)$$

$$D_{H_2O}^{mem} = 3.5 \times 10^{-6} \exp\left(-\frac{2436}{T}\right) \frac{\lambda}{14} \quad (27)$$

$$\lambda = \begin{cases} 0.043 + 17.81a_w - 19.85a_w^2 + 36.0a_w^3 & (0 < a_w \leq 1) \\ 14 + 1.4(a_w - 1) & (1 < a_w \leq 3) \end{cases} \quad (28)$$

$$a_w = \frac{C_{H_2O} RT}{P_{sat}} \quad (29)$$

식 (26)에서 ε_c 는 촉매층에서의 카본의 부피 분율이며 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\varepsilon_c = \frac{L_{Pt}}{\delta_{CL}} \left(\frac{1}{\rho_{c,wt\%}} \right) \quad (30)$$

수소의 경우, 식 (22)에서 S_j 는 각각의 촉매층에서 수소 산화 반응과 수소 환원 반응의 소모 및 생성 속도를 나타내며, 이는 패러데이의 법칙을 사용하여 표현할 수 있다. 물의 경우, 종류 소스텀은 전기삼투견인(EOD, Electro-osmotic drag) 효과에 의한 전해질 막을 통한 물의 거동을 나타낸다. 따라서 수소와 물의 화학종 소스텀은 다음과 같이 표현될 수 있다.

$$S_{H_2} = -\frac{j}{2F} \quad (31)$$

$$S_{H_2O} = -\nabla \cdot \left(\frac{n_d}{F} I \right) \quad (32)$$

여기서 n_d 는 물에 대한 전기삼투견인 계수이며 물 함유량에 따른 함수이다. n_d 는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$n_d = \frac{2.5\lambda}{22} \quad (33)$$

전해질 영역에서 물의 거동에 대한 방정식은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\nabla \cdot \left[\left(\frac{\rho^{mem}}{EW} \right) D_{H_2O}^{mem} \nabla \lambda \right] MW_{H_2O} - \nabla \cdot \left(\frac{n_d}{F} I \right) MW_{H_2O} + \nabla \cdot \left[\left(\frac{K^{mem}}{v^j} \right) \nabla P^j \right] = 0 \quad (34)$$

전기화학반응에 의한 전하 이동은 전하 보존 원리에 의해 결정된다.

$$\begin{aligned} &\text{Charge conservation equation(electrolyte phase)} \\ &\nabla \cdot I_e = \nabla \cdot (k^{eff} \nabla \phi_e) = S_{\phi_e} \end{aligned} \quad (35)$$

$$\begin{aligned} &\text{Charge conservation equation(electron phase)} \\ &\nabla \cdot I_s = \nabla \cdot (\sigma^{eff} \nabla \phi_s) = S_{\phi_s} \end{aligned} \quad (36)$$

여기서 I_e 와 I_s 는 각각 전해질 및 전자의 전류 밀도를 나타낸다. k^{eff} 와 σ^{eff} 는 전기화학수소압축기 셀의 다양한 구성 요소에 대한 이온 및 전자의 유효 전도도를 나타낸다. 이온 및 전자 전도도 k^{eff} 와 σ^{eff} 그리고 전하 전위에 대한 소스텀 S_{ϕ} 은 다음과 같다.

$$k^{eff} = \begin{cases} \varepsilon_e^\tau (0.5139\lambda - 0.326) \exp\left[1268 \left(\frac{1}{303} - \frac{1}{T} \right)\right] & (\text{for CLs}) \\ (0.5139\lambda - 0.326) \exp\left[1268 \left(\frac{1}{303} - \frac{1}{T} \right)\right] & (\text{for membrane}) \end{cases} \quad (37)$$

$$\sigma^{eff} = \begin{cases} (1-\varepsilon)\tau\sigma & (\text{for porous media}) \\ \sigma_{BP} & (\text{for bipolar plates}) \end{cases} \quad (38)$$

$$S_{\phi_e} = j \quad (39)$$

$$S_{\phi_s} = -j \quad (40)$$

2.4 유한요소법 기반 고체 역학

유한요소법 모델은 전기화학수소압축기 셀의 작동 및 클램핑 과정에서의 기계적 영향을 예측하기 위해 개발되었다. 모든 전기화학수소압축기 셀 구성 요소 재료가 탄성이며 등방성 특성을 가진다. 셀 압축 과정에서는 고체 부피는 변하지 않고, 기공 부피만 압축된다고 가정한다. 본 연구에서는 전해질 막의 팽창과 열팽창에 따른 변형은 고려하지 않는다. 후크 법칙에 따라, 클램핑 과정에 의해 발생하는 기계적 하중으로 인해 구성 요소에서 발생하는 변형은 텐서 형태로 표현된다.

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1+\nu}{E}\sigma_{ij} - \frac{\nu}{E}\delta_{ij}\sigma_{kk} \quad (41)$$

여기서 E 는 영률이며, ν 는 셀을 구성하는 재료들의 푸아송 비를 나타낸다. σ_{kk} 는 $\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33}$ 를 나타내며 δ_{ij} 는 크로네커의 델타(Kronecker delta)로 표현되며 다음과 같다.

$$\delta_{ij} = \begin{cases} 1 & (\text{if } i=j) \\ 0 & (\text{if } i \neq j) \end{cases} \quad (42)$$

2.5 경계조건과 수치 모델 구현

수화 조건을 고려하기 위해 수소 가스의 상대 습도는 100%로 가정된다. 일정한 수소 유량(Q_{in})이 가스 채널에 공급되며, 입구 속도는 다음과 같이 계산된다.

$$u_{in,a} = \frac{Q_{in}}{A_{in,a}} \quad (43)$$

여기서 $A_{in,a}$ 는 애노드 입구의 단면적을 의미한다.

작동 조건에서 시뮬레이션은 수소 압축 비율이 10 및 100이고 셀 온도인 $T_{cell} = 50^\circ\text{C}$ 일 때 실행된다. 애노드 분리판의 외부 벽에는 일정한 작동 전류 밀도 조건이 적용되며, 캐소드 분리판의 벽에는 전기 포텐셜 (ϕ_s)이 0이다. 이는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\sigma_s^{eff}\nabla\phi_s = \begin{cases} I_{cell}(x=0) \\ 0(x=L) \end{cases} \quad (44)$$

나머지 계산 영역의 외부 표면은 전기적으로 절연되어 있다고 가정한다.

이 연구에서는 상용 소프트웨어인 앤시스 메카니컬(ANSYS Mechanical)을 사용하여 유한요소법 기반의 고체 모델을 구축했다. 전기화학수소압축기의 조립 과정을 시뮬레이션하기 위해 압축 변형 비율의 20%로 변위 조건을 설정했으며, 이는 최적의 성능 균형 수준으로 판단되었다^[13]. 이 변위 조건은 분리판의 외부 표면에 적용되었으며, 다른 도메인 벽은 마찰 없는 지지로 설정되었다. 막전극접합체 구성 요소 사이의 모든 접합면은 접합되었다고 가정되었기 때문에 클램핑 중에는 미끄러짐 조건이 허용되지 않았다. 또한 수소 가스가 애노드 채널에서 방출되므로 가스 채널 아래의 기체확산층에는 일정한 압력 조건이 적용되었다. 작동조건을 고려하여 유한요소법 시뮬레이션을 수행하였고 작동조건에 의해 변형된 셀의 형상을 기반으로 격자를 생성하여 전산유체역학 시뮬레이션을 수행하였다.

현재의 전기화학수소압축기 모델은 상용 전산유체역학 소프트웨어인 앤시스 플루언트(ANSYS Fluent, v19.3)를 사용하여 구현되었다. 사용자 정의 함수(UDF, User defined function)를 활용했으며, 압력, 농도 및 공간의 그래디언트를 계산하기 위해 필요한 격자 포인트 수는 이전의 그리드 독립성 테스트 결과를 기반으로 결정되었다. 예를 들어, Fig. 2에 표시된 1.2 cm² 크기의 전기화학수소압축기 셀에 대해 생성된 수치적 메쉬의 그리드 포인트 수는 약 40만 개 (x , y 및 z 방향 각각에 대해 약 $140 \times 140 \times 20$)이다. 모든 주요 방정식의 잔차 수렴 기준은 10⁻⁶으로 설정되었다.

3. 결과 및 논의

본 연구에서는 주요 설계 변수가 변형 정도와 수분 관리에 미치는 영향을 조사하였다. 기계적 행동을 고려한 셀 운영 중에 발생하는 수치 시뮬레이션이 수행되었다. 다양한 두께의 나피온(Nafion, Dupont, 미국) 막 (Case 1 및 2)인 N115 (127 μm), NR212 (50.8 μm) 및 N117 (183 μm)가 사용되었다. 기체확산층의 두께 (Case 3 및 4)는 참조 값 주변의 낮은 값과 높은 값으로 변화되었다.

먼저, Fig. 3a에 표시된 대로 N115, N117 및 NR212와 같은 다양한 나피온 막을 사용하여 시뮬레이션 및 실험적으로 측정된 결과 곡선은 높은 일치율을 보여준다. 작동 전류 밀도 범위 ($0 < I < 1.0 \text{ A/cm}^2$)에서 막이 더 두꺼워질수록 셀 전압이 증가하는 것을 확인할 수 있다. 특히, N115와 N117에서는 고전류 밀도에서 지수적인 전압 상승이 나타나는데, 이는 수분 탈수로 인한 이온 전도도 감소로 인한 것이다^[8,14]. 전압의 급격한 상승에 해당하는 전류 밀도 지점은 참조 사례 (N115)에서 약 0.77 A/cm², Case 2 (N117)에서는 약 0.57 A/cm²로 나타났다. 반면, NR212의 Case 1은 작동 중에 전압이

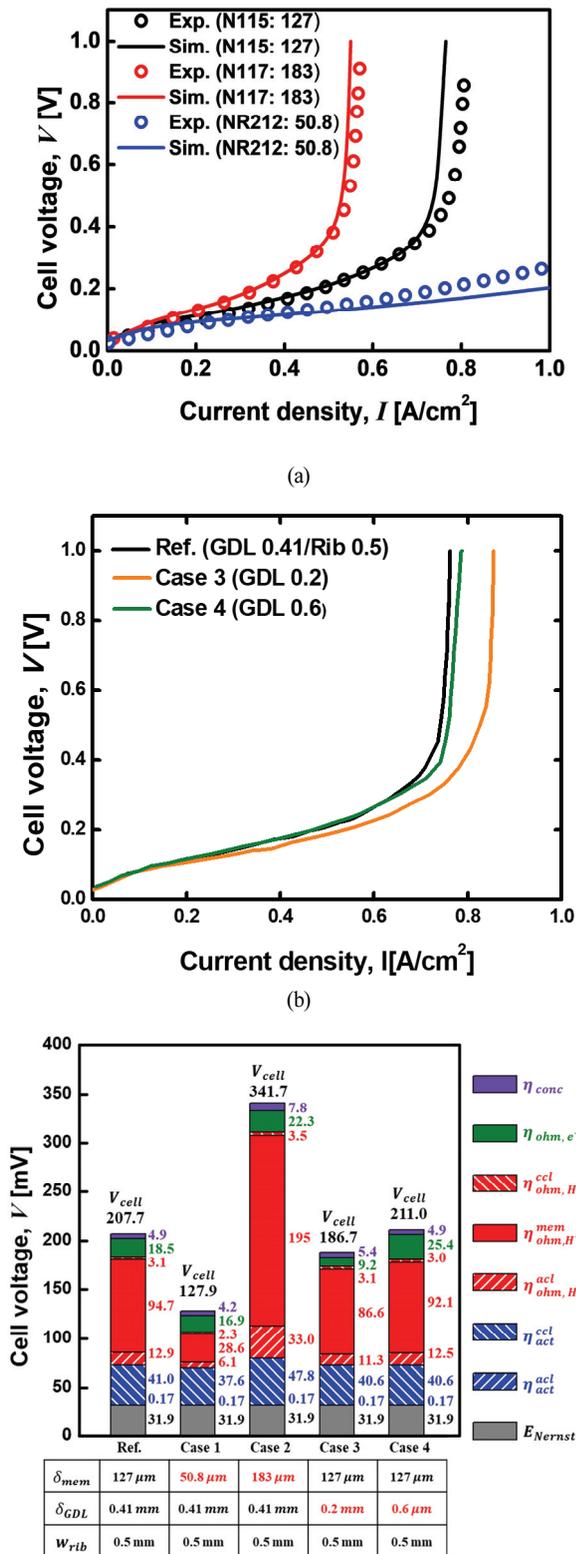


Fig. 3 Polarization curves of (a) simulated and measured data for Case, Ref (N115, $\delta_{mem} = 127 \mu m$), Case 1 (NR212, $\delta_{mem} = 50.8 \mu m$) and Case 2 (N117, $\delta_{mem} = 183 \mu m$), (b) Case 3 ($\delta_{GDL} = 0.2 mm$), Case 4 ($\delta_{GDL} = 0.6 mm$), (c) Comparison of cell voltage losses at constant current density of 0.5 A/cm²

선형적으로 증가하는데, 이는 프로톤 전도도가 높아져 옴 손실이 낮아지기 때문이다. 높은 전류 밀도 ($I > 1.0 A/cm^2$)에서는 셀 전압의 급격한 상승이 예상된다. Fig. 3b는 기체확산층 두께에 따른 셀 성능 곡선을 비교할 수 있다. 이 곡선들은 0.7A/cm²까지 거의 동일한 성능을 보이지만 고전류 밀도 범위에서 전압 차이가 발생한다. 특히, Case 3은 곡선의 기울기가 가장 작으므로 기체확산층의 낮은 두께로 성능 향상이 이루어진 것으로 결론지을 수 있다.

0.5A/cm²의 고정 전류 밀도에서 각 경우의 총 셀 전압과 최소 수분 함량을 Table 3에 나타냈다. 적용된 셀 전압은 열역학적 평형 전위, 활성화 전위(η_{act}), 옴 전위(η_{ohm}) 및 농도 초과전위(η_{conc})의 합으로 표현될 수 있다. Fig. 3c에 그려진 대로 먼저, 열역학적 평형 전위는 $P_c=10 bar$ 에 해당하는 네른스트 전압은 31.9mV이다(식 (13) 참조). 애노드의 활성화 초과전위는 수소산화 반응이 매우 빠르게 진행되기 때문에 0.17mV로 나타났다. 반면, 캐소드에서는 수소 환원 반응에 의해 37-48 mV의 손실이 측정되었다. 양이온 전달에 따른 옴 전압 손실(η_{ohm, H^+})은 주로수분 함량에 의존하는 전도도 때문에 발생한다. 따라서 고압에서는 애노드보다 캐소드에서 더 높은 옴 손실이 측정되었다. 또한, 전해질 막을 통한 양이온 전달은 전체적인 셀 전압에 큰 기여를 하며, NR212를 사용한 Case 1은 가장 낮은 옴 전위인 28.6mV를 나타내며, N117를 사용한 Case 2에서는 195mV로 가장 큰 손실을 보였다. 이는 막의 두께를 감소시킴으로써 성능 향상의 정도가 다른 경우보다 더 명확하다는 것을 의미한다. 또한 전자 전달에 의한 옴 전위 손실(η_{ohm, e^-})은 9.2 mV에서 25.4 mV로 예측되며 주로 기체확산층 두께에 영향을 받는다.

다양한 막 두께에 따른 변형과 폰 미제스(Von-mises) 응력 분포는 Fig. 4에 나타나있다. 채널의 립 아래의 다공성 기체확산층이 압축되고 생성된 수소가 $P_c=10 bar$ 에서 방출되기 때문에 애노드 방향으로 변형된다. 이 변형은 종자 분포에 불균일한 변화를 일으키고 수분 이동에 상당한 영향을 미친다고 알려져 있다^[15]. 또한, 전해질 막 두께가 줄어들며 따라 변형과 폰 미제스응력이 증가하는 것도 보여진다. 여기서 양극 채널 영역에서 기체확산층의 최대 침투 두께 ($\Delta\delta_{int, max}$)는 Ref. 케이스, Case 1 및 2의 침투 비율

Table 3 Summary of geometric details of parametric cases and calculated results

Descriptions	Ref. case	case 1	case 2	case 3	case 4
δ_{MEM} [μm]	127	50.8	183	127	127
δ_{GDL} [mm]	0.41	0.41	0.41	0.2	0.6
w_{rib} [mm]	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
Volatge [mV]	207.7	127.9	341.2	186.7	211.0
Water content, $\lambda_{min,act}$	5.936	11.151	2.194	6.943	6.210

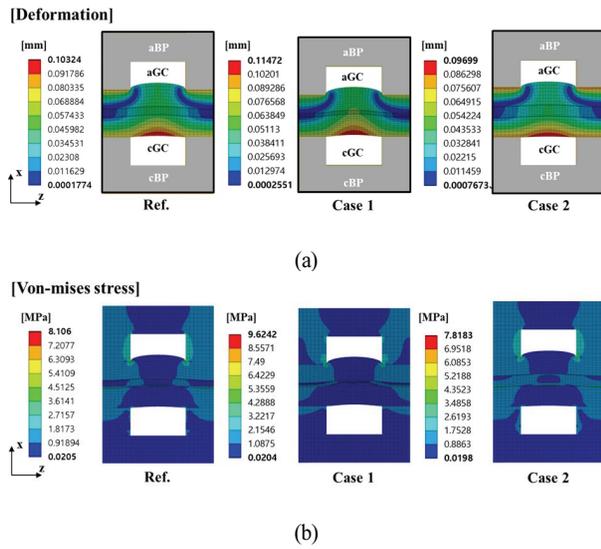


Fig. 4 Distribution of (a) deformation (b) Von-mises stress during cell operation for Case, Ref (N115, $\delta_{mem} = 127 \mu m$), Case 1 (NR212, $\delta_{mem} = 50.8 \mu m$) and Case 2 (N117, $\delta_{mem} = 183 \mu m$)

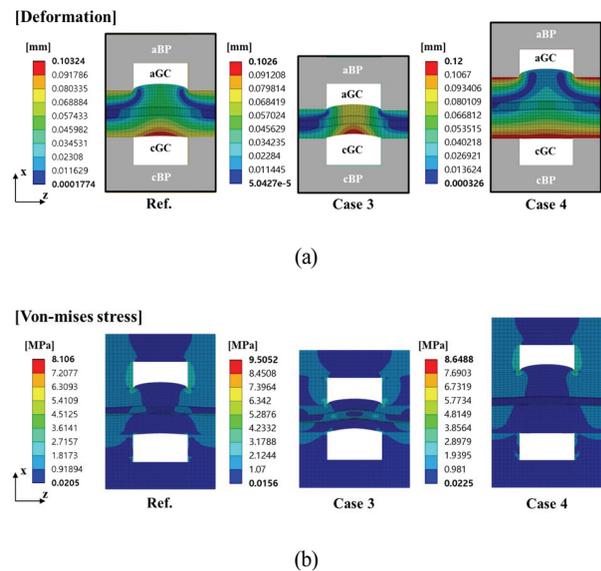


Fig. 5 Distribution of (a) deformation (b) Von-mises stress during cell operation for Case, Ref ($\delta_{GDL} = 0.41 mm$), Case 3 ($\delta_{GDL} = 0.2 mm$) and Case 4 ($\delta_{GDL} = 0.6 mm$)

($\Delta\delta_{int,max}/\delta_{GDL}$)이 각각 약 31.7%, 34.1% 및 26.8%인 경우 약 0.13 mm, 0.14 mm, 0.11 mm로 측정된다. 결과적으로, 막의 더 얇은 두께는 셀 운영 중에 더 심한 변형과 더 높은 응력 발생을 야기한다.

Fig. 5는 다른 기체확산층의 변형과 폰 미세스응력 분포를 보여준다. Fig. 4에서와는 반대로 클램핑 압력이 적용되지만 고강도의 애노드 방전 압력으로 인해 변형이 양극 방향으로 발생한다. 따라서 두꺼운 기체확산층 두께를 가진 Case 4의 애노드에서는 거의 균일한 변형이 예측된다. 이는 셀 조립 및 양극 압력의 복합적인 영향으로 인한 것이다. 또한, 기

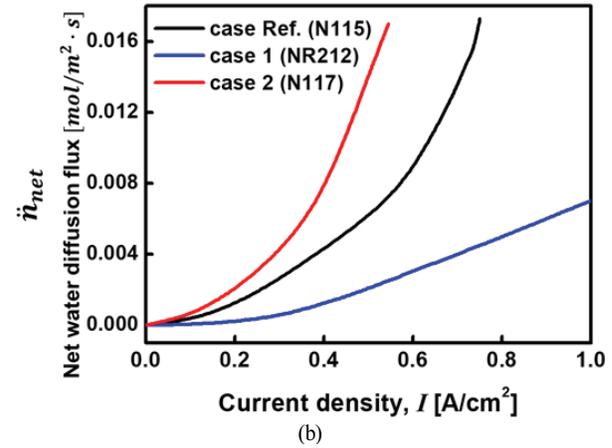
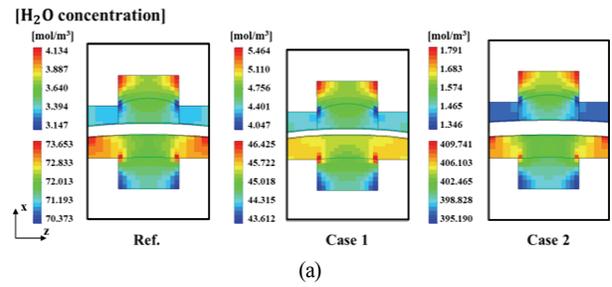


Fig. 6 (a) Distribution of water concentration in the middle cross-section of anode and cathode (b) net water molar flux from the anode through the membrane to the cathode as a function of operating current density for Case, Ref (N115, $\delta_{mem} = 127 \mu m$), Case 1 (NR212, $\delta_{mem} = 50.8 \mu m$) and Case 2 (N117, $\delta_{mem} = 183 \mu m$)

체확산층의 최대 침투 두께 ($\Delta\delta_{int,max}$)는 침투 비율이 각각 31.7%, 55% 및 23.3%인 경우 Ref. 케이스, Case 3 및 4에서 각각 약 0.13 mm, 0.11 mm, 0.14 mm로 측정된다. 최대 응력 값에 대해서는, 기체확산층 두께가 0.41 mm(Ref. 케이스)인 경우 기계적으로 우수함을 보인다. 앞서 언급한 바와 같이 기체확산층은 셀 구성 요소 중에서 영률이 가장 낮은 다공성 매체이다. 셀 적층 방향으로의 변위범위는 기체확산층 두께에 비례하므로, $\delta_{GDL} = 0.6mm$ 인 Case4가 가장 큰 침투 정도를 가진다. 반면, $\delta_{GDL} = 0.2mm$ 인 Case3은 더 얇은 두께 때문에 가장 작은 변형을 야기한다. 이는 전기화학수소압축기 셀 운전 중 더 안정적인 기계적 특성을 위해 기체확산층 설계 변수가 최적화되어야 함을 의미한다.

전산유체역학 기반 시뮬레이션은 다양한 전기화학수소압축기 셀 디자인에서의 수소 및 물의 이동 메커니즘을 분석하기 위해 수행되었다. 주의해야 할 점은 물이 애노드 쪽에서만 공급되며, 셀은 전해질 막에 물의 함유량이 유지되도록 설계되어야 한다는 점이다. Fig. 6a는 전류밀도 0.5 A/cm²의 작동 조건에서 막 두께에 따른 애노드와 캐소드의 중간면에서의 물 농도 분포를 나타낸다. 막의 두께가 더 두꺼운 N117 (Case 2)의 셀에서 최소 물 농도($C_{H_2O,min}$)는 1.346

mol/m³으로 확인된다. 이는 막의 두께를 줄임으로써 애노드에서의 수분 고갈 정도가 효과적으로 완화된다는 것을 의미한다. 기계적인 영향을 고려하면, 막의 두께가 낮아지면 (Case 1), 셀의 변형이 가장 크기 때문에 채널에서보다 물의 분포가 불규칙하게 나타난다. Fig. 6b에서 참조 케이스를 포함한 케이스 1 및 2에 대해 전류 밀도에 따른 막을 통한 순수한 물의 플럭스를 비교할 수 있다. 막을 통한 순수한 물의 플럭스는 전기삼투현상과 역확산에 의한 두 개의 물 플럭스를 결합하여 다음과 같이 정의할 수 있다.

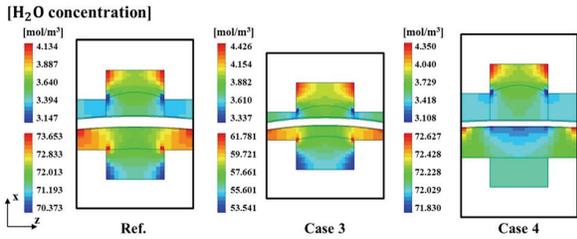
$$\ddot{n}_{net} = \ddot{n}_{EOD} - \ddot{n}_{Back} = \frac{n_d}{F} I - D_{H_2O} \frac{\rho_{mem}^{mem}}{EW} \frac{\lambda_{mem/cCL} - \lambda_{mem/aCL}}{\delta_{mem}} \quad (45)$$

여기서 $\lambda_{mem/cCL}$ 와 $\lambda_{mem/aCL}$ 는 전해질 막과 애노드 촉매층 사이, 전해질 막과 캐소드 촉매층 사이의 접합면에서의 물 함유량을 나타낸다. 먼저, \ddot{n}_{net} 은 작동 전류 밀도 범위 내에서 양수이며 전류 밀도가 증가함에 따라 계속 상승하여 전기삼투현상의 영향이 물의 이동에 지배적인 것을 명확하게 보여준다. 반면 NR212 (Case 1)의 \ddot{n}_{net} 은 Fig. 3a에 나타난 셀 전압의 추세와 동일하게 선형적으로 증가하여 막의 탈수를

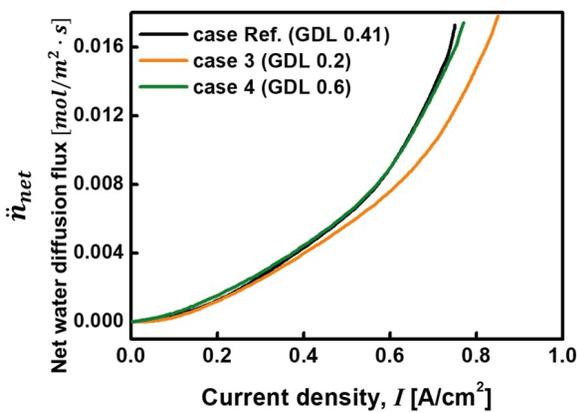
방지하기에 충분한 물 확산량을 가지고 있음을 의미한다.

Fig. 7a는 기체확산층 두께에 따른 물의 농도를 보여준다. 더 얇은 기체확산층 두께 (Case 3)에서 최소 물 농도가 3.337 mol/m³으로 관찰되었다. 이는 기체확산층 두께가 감소함에 따라 캐소드의 건조 현상이 완화되는 경향이 있음을 의미한다. 게다가, 기체확산층 두께가 증가함에 따라 비교적 균일한 변형이 발생하므로 양 채널에서 물 농도의 균일성이 증가하는 것을 관찰하였다 (Fig. 5 참조). 또한, Fig. 7b에서는 기체확산층 두께에 대한 물 이동을 나타내며, Fig. 3b의 성능 곡선의 전압 추세를 설명할 수 있다. 기체확산층 두께의 감소는 약간의 물 확산량 증가를 가져오며 (식 (22) 참조), 캐소드에서 애노드로의 확산 경로가 짧아져 막의 수분을 유지하는 데 도움이 됨을 결론으로 도출할 수 있다.

수행된 시뮬레이션은 기체확산층 특성에 따라 10 bar와 100 bar의 압력 비율 (P_c / P_a)에서 수행되었다. 이를 통해 성능을 분석하고 기체확산층이 더 높은 수소 압축에 대한 영

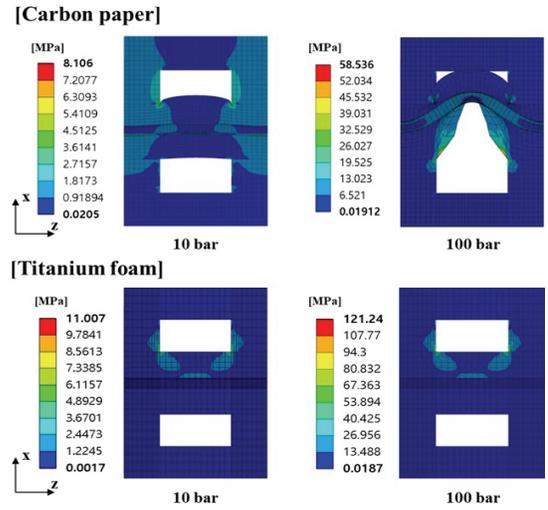


(a)

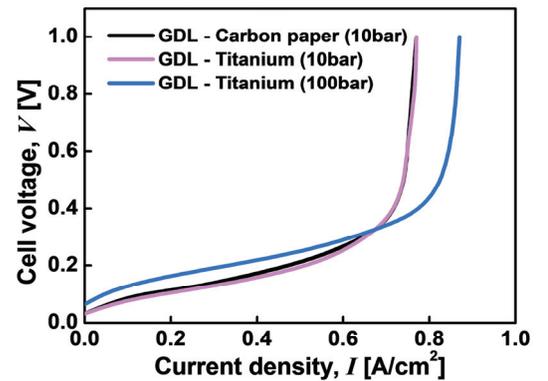


(b)

Fig. 7 (a) Distribution of water concentration at 0.5 A/cm² in the middle cross-section of anode and cathode (b) net water molar flux from the anode through the membrane to the cathode as a function of operating current density for Case. Ref ($\delta_{GDL} = 0.41$ mm), Case 3 ($\delta_{GDL} = 0.2$ mm) and Case 4 ($\delta_{GDL} = 0.6$ mm)



(a)



(b)

Fig. 8 (a)Distribution of Von-mises stress and (b) polarization curves of simulated data of carbon paper GDL and titanium foam GDL at different pressure ratios (P_c / P_a)

향을 충분히 견딜 수 있는지 검증했다. Fig. 8a에서 관찰된 바와 같이, 카본 페이퍼로 제작된 기체확산층은 캐소드 방출 압력이 100 bar로 운전되는 경우에 임계적인 기계적 손상을 보인다. 따라서 기계적 신뢰성이 뛰어난 티타늄 (Ti) 폼으로 기체확산층을 교체하는 것을 필수적으로 고려해야 한다. 이로 인해 전기화학적 성능이 향상될 것으로 예상된다. 카본 페이퍼로 제작된 기체확산층과 티타늄 폼 기체확산층의 영률은 각각 6.3 MPa와 10,400 MPa이므로, 티타늄 폼이 카본 페이퍼 기체확산층보다 변형이 적고 더 높은 응력을 견딜 수 있음을 확인했다.

Fig. 8b는 10 bar의 동일한 캐소드 방출 운전 압력 하에서 카본 페이퍼 기체확산층과 티타늄 폼 기체확산층의 성능 곡선을 비교한다. 0-1.0 A/cm²의 전류 밀도 범위에서 낮은 전류 밀도 범위인 0.1-0.6 A/cm²에서는 티타늄의 전자 전도도가 증가함에 따라 셀 전압이 50 mV 향상되는 것을 보여준다 또한, 캐소드 방출 압력이 100 bar까지 압축되면, 네렌스트 전압의 기여도가 증가하며 (식 (13) 참조), 전체 셀 전압이 증가한다. 높은 수소 방출 압력은 수분 관리에 효과적이기 때문에 (참고 문헌^[9]), 캐소드 방출 운전 압력이 100 bar인 경우에는 적용된 셀 전압이 급격히 상승하는 지점이 더 높은 전류 밀도로 이동된다. 따라서, 캐소드 방출 압력이 10 bar인 경우는 낮은 전류 밀도에서 성능이 더 우수하며, 캐소드 방출 압력이 100 bar인 경우는 전류 밀도가 증가함에 따라 성능이 향상된다. 그러나 G. Chen 등^[16]은 티타늄 재료가 상당히 비싸며 현재는 얇고 가벼우며 다공성을 높이기 어렵고 본 연구에서는 3차원 유한요소법 및 전산유체역학 기반 모델을 사용하여 전기화학수소압축기(전기화학 수소 압축) 셀 디자인 변수가 기계적 특성과 수분 관리에 미치는 영향을 분석했다. 전해질 막 두께, 가스 확산층(기체확산층) 두께 등 다양한 공정 및 재료 비용이 많이 소요될 것으로 예상된다. 그럼에도 불구하고, 특히 전기화학수소압축기에서는 고압력 운전에서 티타늄 재료를 사용하는 것이 유리하다.

4. 결 론

변수를 단일 전기화학수소압축기 셀에서 조사했다. 이 모델은 셀 조립 절차 및 운전 과정을 고려하여 변형 및 폰 미세 응력 분포를 자세히 분석하여 기계적 안정성을 더 잘 이해하기 위한 노력을 기울였다.

또한, 전기화학수소압축기 구성요소에서의 전기화학 및 전달 과정을 시뮬레이션하여 셀 성능과 수분 이동을 예측했다. 이 연구의 주요 결론은 다음과 같다.

1. 현재의 전기화학수소압축기 모델은 다른 막 조건에서 실험 데이터와 시뮬레이션 결과 간에 좋은 일치를 보여주었다. 특히, 이 모델은 불충분한 수분을 나타내는 고전류 밀

도 영역에서 적용 전압의 급격한 상승을 성공적으로 포착하였다.

2. 수소 압축 비율이 10인 경우의 시뮬레이션 결과에서는 전해질막과, 가스확산층의 두께가 두꺼울수록 낮은 내부응력을 보였다. 그러나 기체확산층 두께가 더 두꺼운 경우 ($\delta_{GDL} = 0.6 \text{ mm}$)에는 채널로 가장 큰 침투 정도를 보여주므로 전기화학수소압축기의 효율적인 운전을 위해 최적화가 필요하다.
3. 물의 수송거리가 셀 적층 방향으로 감소함에 따라, 낮은 막 두께는 물의 역확산의 영향으로 인해 애노드 탈수 현상이 완화되는 경향을 보였다. 또한, 얇은 기체확산층은 애노드 채널과 막전극접합체 사이의 확산 거리가 짧아지므로 유리한 조건이다.
4. 고압 운전에서 견딜 충분한 기계적 특성이 기체확산층에 필요하다. 따라서, 전기화학수소압축기가 높은 압력 비율 ($P_c / P_a > 100$)로 운전될 때, 상업용 카본 페이퍼 기체확산층에 비해 강도가 높은 티타늄 폼을 기체확산층 구성 요소로 사용하는 것이 권장된다.

전기화학수소압축기(전기화학 수소 압축) 셀은 애노드 건조 문제뿐만 아니라 애노드와 캐소드 사이의 높은 압력 차이로 인한 기계적인 결함에도 영향을 받는다. 따라서 전기화학수소압축기 셀은 기계적 신뢰성과 전기화학적 성능을 동시에 고려하여 설계되어야 한다.

후 기

이 논문은 2023년도 정부(산업부)의 재원으로 한국산업기술진흥원의 지원을 받아 수행된 연구임. (과제번호:P0021513)

References

- (1) M. Rhandi, M. Trégaro, F. Druart, J. Deseure, M. Chatenet, Electrochemical hydrogen compression and purification versus competing technologies: Part I. Pros and cons, Chinese J. Catal. 41 (2020) 756-769.
- (2) W. Chen, B. Cameron, S. Narayanan, A Cryocooler Driven by Electrochemical Compressors with No Moving Parts, n.d.
- (3) Proceedings of the Symposium on Diaphragms, Separators, and Ion-Exchange Google Kitaplar, n.d
- (4) J. Jou, Y. Jin, Z. Wen, S. Xing, N. Han, K. Yao, Z. Zhao, M. Chen, J. Fan, H. Li, H. Wang, Insights into electrochemical hydrogen compressor operating parameters and membrane electrode assembly degradation mechanisms, J. Power Sources 484 (2021) 229249.
- (5) Y. Hao, H. Nakajima, H. Yoshizumi, A. Inada, K. Sasaki, K. Ito, Characterization of an electrochemical hydrogen pump with internal humidifier and dead-end anode channel, Int. J.

- Hydrog. Energy 41 (2016) 13879–13887.
- (6) D. Qiu, H. Janßen, L. Peng, P. Irmscher, X. Lai, W. Lehnert, Electrical resistance and microstructure of typical gas diffusion layers for proton exchange membrane fuel cell under compression, *Appl. Energy* 231 (2018) 127–137.
 - (7) B. Rohland, K. Eberle, R. Ströbel, J. Scholta, J. Garche, Electrochemical hydrogen compressor, *Electrochim. Acta* 43 (1998) 3841–3846.
 - (8) B. Rohland, K. Eberle, R. Ströbel, J. Scholta, J. Garche, Electrochemical hydrogen compressor, *Electrochim. Acta* 43 (1998) 3841–3846.
 - (9) J. Lee, S. Yoon, H. Park, M. F. Chinannai, T. T. Phan, S. Kim, H. Ju, Coupled mechanical and electrochemical modeling and simulations for Electrochemical Hydrogen Compressors (EHC), Under review.
 - (10) F. Barbir, *PEM fuel cells: Theory and practice*, Elsevier, 2012.
 - (11) R.B. Bird, W.E. Stewart, E.N. Lightfoot, *Transport phenomena*, Wiley, Newyork, 2006.
 - (12) T.F. Fuller, *Solid-polymer-electrolyte fuel cells* (Ph.D. Thesis), University of California, 1992.
 - (13) H. Zhang, M.A. Rahman, F. Mojica, P.C. Sui, P.Y.A. Chuang, A comprehensive two-phase proton exchange membrane fuel cell model coupled with anisotropic properties and mechanical deformation of the gas diffusion layer, *Electrochim. Acta* 382 (2021) 138273.
 - (14) M. Nordio, F. Rizzi, G. Manzolini, M. Mulder, L. Raymakers, M.V.S. Annaland, F. Gallucci, Experimental and modelling study of an electrochemical hydrogen compressor, *Chem. Eng. J.* 369 (2019) 432–442.
 - (15) D.H. Jeon, H. Kim, Effect of compression on water transport in gas diffusion layer of polymer electrolyte membrane fuel cell using lattice Boltzmann method, *J. Power. Sources* 294 (2015) 393–405.
 - (16) G. Chen, H. Zhang, H. Zhong, H. Ma, Gas diffusion layer with titanium carbide for a unitized regenerative fuel cell, *Electrochim. Acta* 55 (2010) 8801–8807.
 - (17) L. Zhang, Y. Liu, H. Song, S. Wang, Y. Zhou, S.J. Hu, Estimation of contact resistance in proton exchange membrane fuel cells, *J. Power Sources* 162 (2006) 1165–1171.
 - (18) L. Hao, K. Moriyama, W. Gu, C.Y. Wang, Modeling and experimental validation of Pt loading and electrode composition effects in PEM fuel cells, *J. Electrochem. Soc.* 162 (2015) F854.
 - (19) H. Ju, G. Luo, C.Y. Wang, Probing liquid water saturation in diffusion media of polymer electrolyte fuel cells, *J. Electrochem. Soc.* 154 (2007) B218–B228.
 - (20) B.M. Stühmeier, M.R. Pietsch, J.N. Schwämmlein, H.A. Gasteiger, Pressure and temperature dependence of the hydrogen oxidation and evolution reaction kinetics on Pt electrocatalysts via PEMFC-based hydrogen-pump measurements, *J. Electrochem. Soc.* 168 (2021) 064516.
 - (21) M.J. Lampinen, M. Fomino, Analysis of free energy and entropy changes for half-cell reactions, *J. Electrochem. Soc.* 140 (1993) 3537.
 - (22) DuPont, Nafion™ Nafion PFSA@PFSA Membranes N-112, NE-1135, N-115, N-117, NE-1110 perfluorosulfonic acid polymer.
 - (23) J. Hilsenrath, C.W. Beckett, W.S. Benedict, L. Fano, H.J. Hoge, J.F. Masi, R.L. Nuttal, Y.S. Touloukian, *Tables of thermodynamic and transport properties*, National bureau of Standards Circular 564, Government printing office, Washington 25, D. C., 1955.
 - (24) J. Hilsenrath, C.W. Beckett, W.S. Benedict, L. Fano, H.J. Hoge, J.F. Masi, R.L. Nuttal, Y.S. Touloukian, *Tables of thermodynamic and transport properties*, National bureau of Standards Circular 564, Government printing office, Washington 25, D. C., 1955.
 - (25) R.B. Bird, W.E. Stewart, E.N. Lightfoot, *Transport phenomena*, Wiley, Newyork, 2006.
 - (26) JNTG, JNTG_2021 Product Catalog.
 - (27) R. Singh, P.D. Lee, T.C. Lindley, C. Kohlhauser, C. Hellmich, M. Bram, T. Imwinkelried, R.J. Dashwood, Characterization of the deformation behavior of intermediate porosity interconnected Ti foams using micro-computed tomography and direct finite element modeling, *Acta Biomater* 6 (2010) 2342–2351.
 - (28) B.S. Mitchell, *An introduction to materials engineering and science for chemical and materials engineers*, John Wiley & Sons, New Jersey, 2004.
 - (29) H.A. Ly, H. Inoue, Y. Irie, Numerical simulation on rapid evaluation of fatigue limit through temperature evolution, *J. Solid Mech. Mater. Eng.* 5 (2011) 459–475.
 - (30) Z. Zhan, H. Zhao, P.C. Sui, P. Jiang, M. Pan, N. Djalali, Numerical analysis of ice-induced stresses in the membrane electrode assembly of a PEM fuel cell under sub-freezing operating conditions, *Int. J. Hydrogen Energy* 43 (2018) 4563–4582.
 - (31) O. Tabata, K. Kawahata, S. Sugiyama, I. Igarashi, Mechanical property measurements of thin films using load-deflection of composite rectangular membranes, *Sens. Actuators* 20 (1989) 135–141.
 - (32) F.N. Büchi, M. Inaba, T.J. Schmidt, *Polymer electrolyte fuel cell durability*, Springer, New York, 2009.