

〈 논문 〉

연료개질기를 연계한 고체 산화물 연료전지 시스템의 운전 특성에 관한 연구

지현진* · 임성광* · 배중면† · 유영성**
(2006년 1월 5일 접수, 2006년 6월 12일 심사완료)

A Study on Operation Characteristics of Planar-type SOFC System Integrated with Fuel Processor

Hyunjin Ji, Sungkwang Lim, Joongmyeon Bae and Yungsung Yoo

Key Words: Solid Oxide Fuel Cell(고체 산화물 연료전지), Fuel Processor(연료개질기), Modeling(모델링), Operation Strategy(운전전략), Matlab/Simulink(맷랩/시뮬링크)

Abstract

The solid oxide fuel cell (SOFC) is expected to be a candidate for distributed power sources in the next generation, due to its high efficiency and high-temperature waste heat utilization. In this study, the 5-cell SOFC stack was operated with pure hydrogen or reformed gas at anode side and air at cathode side. When stack was operated with diesel and methane ATR reformer, the influence of the H₂O/C, O₂/C and GHSV on performance of stacks have been investigated. The result shows that the cell voltage was decreased with the increase of H₂O/C and O₂/C due to the partial pressure of fuel and water, and cell voltage was more sensitive to O₂/C than H₂O/C. Next, the dynamic model of SOFC system included with ATR reformer was established and compared with experimental data. Based on dynamic model, the operation strategy to optimize SOFC-Reformer system was suggested and simulated.

기호설명

V : 전압[V], 체적[m³]
 C : 전기 용량[F]
 A : 활성 면적[m²]
 F : Faraday 상수[=96485 C/mole]
 q : 몰 유량[kmol/s]
 I : 전류 밀도[A/cm²]
 P : 압력[bar]
 R : 기체상수[J/mole K]
 T : 온도[K]
 E : 기전력[V], 활성화 에너지[kJ/mol]
 k : Pre-exponential factor[A/m²]

r : 면적 비저항[Ωcm²]

하첨차

an : 연료극
 ca : 공기극
 act : 활성화 분극 저항

상첨차

0 : 기준 상태
 in : 입구
 out : 출구
 r : 전기화학반응

1. 서 론

* 회원, 한국과학기술원 기계공학과
† 책임저자, 회원, 한국과학기술원 기계공학과
E-mail : jmbae@kaist.ac.kr
TEL : (042)869-3045 FAX : (042)869-8207
** 한국전력 전력연구원

고체산화물 연료전지(solid oxide fuel cell)의 전해질 경우 고온(650~1000℃)에서 작동하기 때문에 다른 연료전지와는 달리 고효율, 친환경적인 열병합 발전, 하이브리드 시스템 구축이 가능할

뿐만 아니라, 내부개질이 가능하여 연료 개질기를 장착하더라도 그 크기를 최소화할 수 있다.⁽¹⁾ 따라서 대형 발전 동력원, 가정용 분산전원, 자동차 보조 전원 등 다양한 분야에의 적용을 위한 시도가 활발하게 진행되고 있으며, 이에 따라 평판형 고체산화물 연료전지의 모델링, 부하 변동에 따른 동적 특성 파악, 정확한 성능 해석 등에 관한 연구와 함께 연료개질기와의 연동 시스템에 대해서도 활발히 연구가 진행되고 있다.

본 연구에서는 기존의 알려진 연료전지의 비가역적인 요소들을 이용하여 고체산화물 연료전지의 동적 모델을 확립하였고, 한전 전력연구원(KEPRI)의 30W(750°C)급 고체산화물 연료전지 스택(stack)을 이용한 운전결과와 비교해 보았다. 연료개질기는 Gibbs 에너지 최소화 원리(Gibbs potential minimization principle)를 바탕으로 O_2/C (oxygen to carbon ratio)과 H_2O/C (steam to carbon ratio) 변화에 따른 메탄(CH_4)의 자열개질반응(autothermal reaction)에 대한 열역학적 데이터를 획득하여 2차원 배열(2-dimension table) 형태로 모델링하였다. Matlab/Simulink[®]를 이용하여 연동 시스템 모델을 시뮬레이션 하였으며, 최적 운전 조건을 위해 연료개질기를 이용한 운전 전략을 제시하였다. 이러한 시뮬레이션 결과는 실제의 30W(750°C)급 고체산화물형 연료전지/메탄 자열 개질기 연동실험 및 1kW급 가정용발전시스템 개발의 기초 데이터로 활용할 수 있었다.

2. 고체산화물형 연료전지/메탄 자열 개질기의 연동운전

2.1 고체산화물 연료전지 스택

본 연구에서 사용된 30W(750°C)급 고체산화물 연료전지 스택은 NiO-YSZ(yttria-stabilized zirconia)/YSZ/LSCF($La_{0.6}Sr_{0.4}Co_{1-x}Fe_xO_3$)의 구조를 기초로 하여 $5 \times 5 \text{cm}^2$ 로 제작된 단전지가 5층 적층되어 있다. 연결재(interconnect)는 스테인리스 430을 이용하여 제조하였는데, 내부 유로(internal manifold) 구조를 바탕으로 한 cross-flow 타입으로 설계되었다. 이 때 공기분위기에서 스테인리스의 빠른 산화를 방지하기 위하여 고체산화물 연료전지의 공기극 재료 중에 하나인 LSM($La_{0.78}Sr_{0.22}MnO_3$)으로 코팅을 시켰다. 또한 단전지와 연결재의 사이에는 니켈 펠트(연료극)와 인코넬 펠트(공기극)를 이용하여 반응물의 통로 및 전류 집합체(current

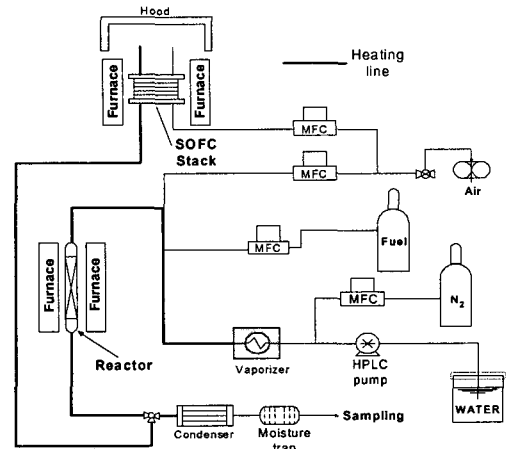


Fig. 1 Schematic of the SOFC stack with ATR experimental apparatus

collector)의 역할이 되도록 하였다. 전압은 멀티미터(Keithley 2700)를 이용하여 각층 마다 측정하였으며, 임피던스는 Solarton 1287/1260을 이용하여 측정하였다.

2.2 메탄 자열개질기

Fig. 1은 본 연구에 사용된 실험장치에 대한 개략도를 보여주고 있다. 자열개질을 위해 공기, 메탄, 수증기는 전기로 내에 설치되어있는 반응기에 정량 공급되었다. 반응기는 귀금속 계통의 촉매를 이용하여 고정층 형태(fixed bed) 구조로 설계되었다. 반응 후에 생성물들은 스택의 연료극으로 직접 연결되었으며, 연결관은 생성물 내에 존재하는 수증기의 응축을 막기 위해서 열선으로 감겨졌다. 또한 생성물의 조성은 탈수장치 거쳐 완벽하게 수분을 제거한 후 가스분석장치(Agilent 6890N)를 이용하여 분석하였다.

3. 고체산화물 연료전지/메탄 자열 개질기 모델

30W(750°C)급 고체산화물 연료전지/메탄 자열 개질기 연동 실험을 바탕으로 가정용 분산 전원 장치의 운전 전략 및 최적 조건을 고찰하기 위하여 Fig.2와 같이 시스템에 대한 모델링을 수행하였다. 시스템은 크게 고체산화물 연료전지 모델(SOFC model)과 메탄 자열개질기 모델(fuel

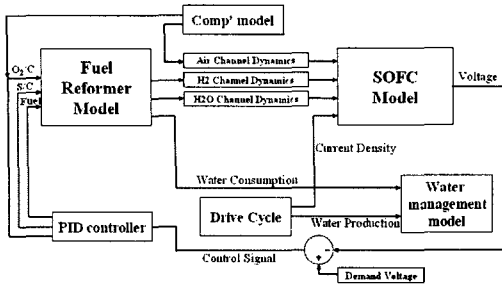


Fig. 2 Schematic of the 30W SOFC/methane ATR reformer system model

reformer) 부분으로 나뉘어져 있고, 두 모델은 채널 동특성 모델(channel dynamics)에 의해서 연결되어 있다. 필요한 전류 사이클(drive cycle)이 연료전지 모델에 입력되면 스택의 전압은 떨어지고, 떨어진 전압과 필요 전압(demand voltage)의 차이는 제어기(controller)의 입력 신호로 들어가게 되어 운전 전략에 따른 제어 변수를 제어하게 된다. 이때 시스템의 실제 운전을 고려하여 공기 압축기 모델(compressor model), 물관리 모델(water management model) 등을 추가하였다. 각 요소에 대한 설명은 다음과 같다.

3.1 고체산화물 연료전지

주어진 전류에서의 연료전지의 전압은 네른스트 전압(Nernst potential)에서 3가지 종류의 비가역적인 요소의 차로 표현된다. 이때 3가지 비가역적인 요소는 전극 면에서의 활성화 손실(activation overpotential), 전극 및 전해질의 내부 저항에 의한 손실(internal resistance overpotential), 농도 변화에 따른 물질 전달 한계에 의한 손실(concentration overpotential)등으로 구분된다. 그러나 본 연구에서는 시스템의 고전류 영역 운전을 고려하지 않을 것이므로 물질 전달한계에 대한 손실은 무시하기로 한다. 또한 스택 각 층에서의 연료 및 공기 공급량, 온도 등은 일정하다고 가정하였고, 전체 스택 전압은 단전지에서 구한 전압에 적합한 단수를 곱하여 표현하였다.

3.1.1 개방회로전압

개방 회로 전압(open circuit voltage)은 연료전지 내부에 비가역성이 존재하지 않을 때, 최대로 얻을 수 있는 전압으로, 식 (1)과 같이 온도와 반응

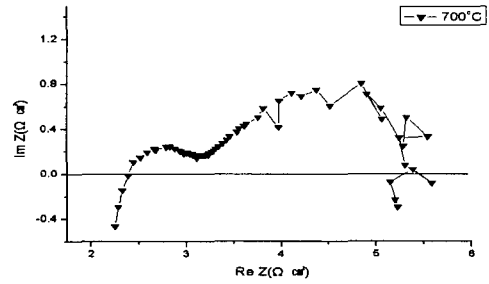


Fig. 3 AC Impedance characteristic curve for 5-cell SOFC stack at 700°C

물의 분압에 의해서 결정된다.⁽¹⁾

$$E = E^0 + \frac{RT}{2F} \ln \left(\frac{P_{H_2}}{P^0} \left(\frac{P_{O_2}}{P^0} \right)^{\frac{1}{2}} \bigg/ \frac{P_{H_2O}}{P^0} \right) \quad (1)$$

3.1.2 활성화 손실

고체산화물 연료전지에서의 활성화 손실 저항에 대한 모델은 여러 가지가 있으나 본 연구에서는 식 (2)와 같이 가장 보편적으로 사용되는 Achenbach⁽²⁾의 모델을 채택하였다.

$$\frac{1}{r_{act.ca}} = \frac{4F}{RT} k_{ca} \left(\frac{P_{O_2}}{P^0} \right)^m \exp \left(- \frac{E_{ca}}{RT} \right) \quad (2a)$$

$$\frac{1}{r_{act.an}} = \frac{2F}{RT} k_{an} \left(\frac{P_{H_2}}{P^0} \right)^m \exp \left(- \frac{E_{an}}{RT} \right) \quad (2b)$$

3.1.3 내부 저항에 의한 손실

저전류 영역에서는 활성화 분극 저항이 크게 작용하나 그 이후에는 내부저항요소가 크게 작용한다. 내부 저항에 대한 모델은 Massardo, A. F.과 Lubelli, F.⁽³⁾ 등에 의해 많이 제시되고 있지만 본 연구에서는 임피던스 분석을 통하여 스택 전체의 저항을 측정하여 사용하였다. Fig.3에서 볼 수 있듯이 700°C에서 작동하는 5단 스택의 전체 내부 저항(internal resistance)은 2.38 Ωcm²(cell 당 0.476 Ωcm²)을 갖는다. 이러한 내부 저항에 대한 실험값을 고체산화물 연료전지 모델에 사용함으로써 실제 시스템을 보다 정확하게 표현할 수 있었다.

3.1.4 전하이중층(charge double layer)

계면에서의 전자/이온 집합체는 새로운 전압을

생성시키고 전하나 에너지를 저장하게 되어, 전기회로에서의 축전기(capacitor)와 같은 역할을 한다. 따라서 전류가 급격하게 변하게 되면 내부 저항 때문에 전압변동은 바로 시작되지만 전하이중층의 영향으로 평형상태의 전압까지는 어느 정도의 시간을 두고 천천히 이동하게 된다. 이러한 연료전지 내에서 충전기 효과를 미분 방정식으로 나타내면 다음과 같다.⁽⁴⁾

$$\frac{dV_{act}}{dt} = \frac{i}{C} - \frac{V_{act}/\tau_{act}}{C} \quad (3)$$

3.2 연료개질기 모델

연료 개질을 통한 수소 생성에는 (1) 수증기 개질(steam reforming), (2) 부분산화개질(partial oxidation), (3) 자열개질(autothermal reforming)의 세 가지 반응이 이용되고 있다. 이 중 자열개질은 수증기 개질과 부분산화개질의 복합체로서 적절한 발열 반응을 유지하여 수증기 개질과 부분산화개질의 장점을 모두 가진 반응시스템으로 평가되고 있다. 따라서 본 연구의 연료개질기 모델은 700°C에서 운전되는 자열개질을 기초로 하였고, 액화천연가스의 주요 성분으로 알려져 있는 메탄을 연료로 설정하였다. 또한 연료전지와 연동 시스템을 고려하여 자열개질기 모델은 반응물의 조성 변화(H₂O/C, O₂/C)에 따른 생성물의 조성에 초점을 두었다.

생성물의 구성은 계산 시간의 단축을 위하여 미리 계산된 H₂O/C, O₂/C에 따른 열역학적 데이터를 바탕으로 수소(H₂), 일산화탄소(CO), 물(H₂O), 이산화탄소(CO₂) 생성물의 2차원 배열을 형성하였고, 데이터 사이의 값들에 대해서는 Matlab/Simulink[®]에서 제공하는 보간법을 이용하여 그 값을 얻을 수 있었다.

3.3 공기 압축기 모델

고체산화물 연료전지 스택과 메탄 자열개질기에 필요한 공기는 블로어(blower)나 압축기를 이용하여 공급할 수 있다. 블로어는 비교적 고유량의 공기를 저전력을 이용해서 공급할 수 있으나, 차압이 큰 시스템에는 사용할 수 없다. 이에 반해 압축기는 블로어보다 많은 전력을 소비하나, 차압이 큰 시스템에 적합하다. 본 연구에서는 1kW급 이상의 가정용 분산전원을 고려하여 G. I. Tech의 B51-BA401제품을 기초로 하여 유량 및

압력에 대한 실험을 바탕으로 압축기 모델을 개발하여 사용하였다.

3.4 채널 동특성 모델

고체산화물 연료전지는 고온에서 작동되기 때문에 반응 기체들은 이상기체라고 가정할 수 있다. 이때 연료전지를 검사 체적(control volume)라고 생각하고 체적내의 수소에 질량 보존 법칙을 적용시키면 식과 같이 표현할 수 있다.

$$\frac{dP_{H_2}}{dt} = \frac{RT}{V_{an}}(q_{H_2}^{in} - q_{H_2}^{out} - q_{H_2}^r) \quad (4)$$

즉, 검사체적내의 압력 변화는 입구 유량, 출구 유량, 전기화학반응에 참가한 유량 변화로 표현할 수 있다. 이때 전기화학반응에 참가한 유량은 식 (5)를 통해 계산할 수 있다.

$$q_{H_2}^r = \frac{iA_{an}}{2F} \quad (5)$$

3.5 PID 제어부

본 연구에서는 고체산화물 연료전지 스택이 메탄 개질기와 연동 운전되기 때문에 개질기의 조건의 변화를 통해 시스템을 제어할 수 있다. 따라서 제시된 운전전략에 대해서 식 (6)과 같은 PID 제어를 이용하여 개질기의 조건을 변화시켜 각 운전전략의 요구 조건을 충족시키도록 하였다.

$$G(s) = K_p(s + T_d s^2 + 1/T_i)/s \quad (6)$$

3.6 효율 계산

고체산화물 연료전지/연료개질기의 연동 시스템에 대한 연료개질기 효율, 연료전지 시스템 효율, 연료이용률, 전체 시스템 효율은 아래와 같은 식을 이용하여 구할 수 있다.

$$\eta_{reformer} = \frac{LHV_{H_2,298K} \times (\text{moles of } H_2 + CO)_{in\ product}}{LHV_{CH_4,298K} \times CH_{4,feed}} \quad (7)$$

$$\eta_{SOFC} = \frac{\text{Stack power} - \text{Air compressor power}}{\text{Stack power} / \text{Cell efficiency}} \quad (8)$$

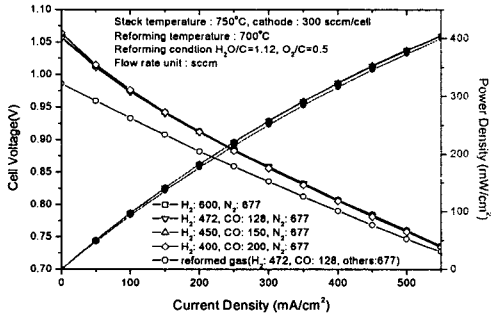


Fig. 4 Performance of the one of cells in 30W stack as various fuel

$$\lambda_{Utilization} = \frac{\text{The spent fuel flow rate}}{\text{The inlet fuel flow rate}} \quad (9)$$

$$\eta_{Total} = \lambda_{Utilization} \times \eta_{Reformer} \times \eta_{SOFC} \quad (10)$$

본 연구에서 정의된 효율은 시스템이 운전되는 전기로의 소비전력에 대해서는 고려하지 않았다. 즉 연료 개질기는 전체 반응 자체가 발열반응이 되는 조건에서 운전되어지고, 연료전지 스택 역시 전기화학 반응에 참여하지 않은 연료를 태워 얻은 열이나 연료 전지의 비가역적인 요소로 발생하는 열을 이용하여 온도를 유지할 수 있을 것이라 생각하였다. 그러나 시스템에 대한 전체적인 열해석은 추후에 필요하다고 판단된다. 전기로를 제외한 BOP 경우에는 운전 영역에 따라서 소모 전력 변화가 큰 공기 압축기만 고려하여 계산하였다. 따라서 실제의 연료전지시스템의 효율은 계산된 값보다 더 적게 나올 것이라는 것을 예상할 수 있다. 그러나 본 연구에서 계산된 효율 변화의 경향성은 실제 시스템 설계에 유용하게 이용되어 질 수 있다고 판단된다.

4. 연료전지/연료개질기 운전 전략

4.1 전략 1 : 연료이용률 유지를 위한 연료 유량 제어

시스템의 인가전류 값을 바탕으로 필요한 수소량을 수식적으로 계산한 후, 연료극의 연료이용률이 0.5가 되도록 개질기에 들어가는 연료량을 PID 제어하였다. 이때 연료개질기는 선행 연구를 통하여 최적 조건으로 알게 된 H₂O/C : O₂/C =

1.12 : 0.6를 유지하도록 수증기와 공기의 양을 비례하여 증가시키도록 모델링 하였다.⁽⁵⁾

4.2 전략 2 : 전압유지를 위한 연료 유량 제어

고체산화물 연료전지는 인가 전류가 증가함에 따라 비가역적인 저항으로 인해 출력 전압은 줄어든다. 그러나 이러한 출력 전압은 공급되는 반응물의 유량을 제어함으로써 변화시킬 수 있다. 저장 탱크에서 수소를 공급받는 연료전지시스템 경우에는 전류 변화에 따라 유량제어기(mass flow control)를 통해 직접적으로 연료와 공기의 양을 조절하여 출력 전압을 변화시킬 수 있으나 연료전지/연료개질기 연동 시스템에서는 개질기로 들어가는 반응물의 유량을 변화시켜 시스템의 전압을 제어해야 한다. 따라서 전략 2의 경우에는 인가전류에 따라 시스템의 전압을 일정하게 유지하기 위해서 개질기에 공급되는 연료의 양을 제어하여 스택에 들어가는 연료의 분압을 조절하도록 하였다. 이때 연료이용률은 고려하지 않았으며, 개질기에 들어가는 메탄의 양에 따라 H₂O/C : O₂/C = 1.12 : 0.6를 유지하도록 수증기와 공기의 양도 비례하여 변화시키도록 모델링 하였다.

4.3 전략 3 : 전압유지를 위한 개질기 O₂/C 제어

연료 개질기의 생성물은 H₂O/C와 O₂/C에 의해서 결정된다. 특히 본 연구를 통해서 자열 개질 운전에서 O₂/C는 H₂O/C에 비해 개질기의 수소 및 일산화탄소의 수득율에 큰 영향을 미친다. 따라서 H₂O/C는 1.12 고정하고 연료전지가 일정한 전압을 유지하도록 개질기에 들어가는 공기량을 PID제어하여 스택에 들어가는 반응물의 분압을 조절 하였다.

5. 결과 및 고찰

5.1 일산화탄소의 영향

Fig. 4는 30W급 고체산화물연료전지 스택을 메탄 자열개질기와 연동운전 하였을 경우, 하나의 단전지에 대한 전류-전압에 대한 특성 곡선이다. 먼저 개질기의 생성물 중에 하나인 일산화탄소의 고체산화물 연료전지에 대한 영향을 알아보기 위해 스택에 공급되는 수소와 일산화탄소의 총량은 600sccm으로 고정하고 비율은 달리하여 전류-전압 특성곡선을 측정해 보았다. 그 결과 연료전지

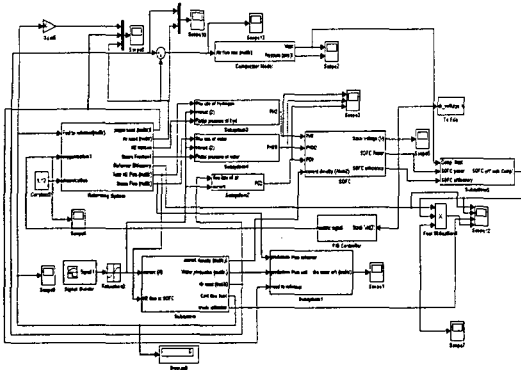


Fig. 5 Block diagram of Solid Oxide Fuel Cells integrated with fuel processor

는 일산화탄소의 양에 상관없이 순수한 수소를 이용했을 경우와 동일한 성능을 얻을 수 있었으며, 이를 통해 일산화탄소도 고체산화물 연료전지에서는 좋은 연료가 될 수 있다는 것을 확인할 수 있었다. 이러한 실험 결과를 바탕으로 고체산화물 연료전지 모델에서의 연료의 분압은 메탄 자열개질기에서 생성된 수소와 일산화탄소 양의 합으로 표현할 수 있다. 그러나 메탄 자열개질기를 통해 동일한 양의 연료를 스택에 공급했을 경우, 고체산화물 연료전지의 개방회로전압이 1.063V에서 0.986V로 감소하는 것을 볼 수 있었다. 이러한 결과는 메탄 자열개질기를 통해 공급된 연료 내에는 순수한 수소를 사용했던 경우와는 달리 다량의 수증기가 함유되어 있기 때문에서 (1)에서도 알 수 있듯이 개방회로전압이 떨어지기 때문이다. 그러나 이러한 다량의 수증기는 단전지가 고전류 영역에서 운전될 경우, 오히려 고체산화물 연료전지의 성능향상에 도움이 되기 때문에,⁽⁶⁾ 초기의 전압 감소폭은 고전류 영역으로 갈수록 크기가 줄어드는 것을 확인할 수 있었다.

5.2 고체산화물 연료전지/메탄 개질기 연동 운전

Fig. 5는 고체산화물 연료전지/메탄 자열개질기 연동 시스템을 Matlab/Simulink[®]로 표현한 블록 다이어그램(block diagram)으로 Fig. 2에서와 같이 크게 고체산화물 연료전지 모델, 연료 개질기 모델, 공기 압축기 모델, PID 제어 및 채널 동특성 모델 등으로 구성되어 있다. 운전 전략에 대한 시뮬레이션에 앞서, 본 연구에서 채택한 고체산화물 연료전지/메탄 자열개질기 모델이 실제 시

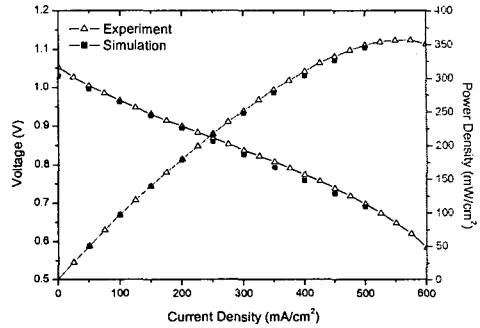


Fig. 6 Simulation and experimental results of SOFC system for a series of input step changes

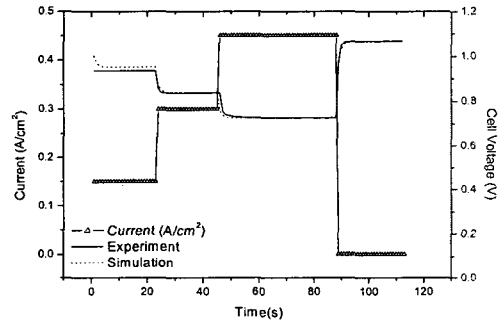


Fig. 7 Comparison of dynamic characteristics between experiment and simulation

스템을 대표 가능한지 여부를 확인하기 위해 부하변동에 따른 전압 변화를 실험 결과와 비교해 보았다. Fig. 6에서 보는 것과 같이 운전 조건이 동일하였을 때, 실제 실험을 통해 구한 전류-전압 특성 곡선과 시뮬레이션 결과가 잘 일치하는 것을 확인할 수 있다. 이는 고체산화물 연료전지 성능에 가장 큰 영향을 미치는 내부 저항에 의한 손실 값을 실제 임피던스(impedance spectroscopy) 측정을 통해 모델에 적용하였기 때문이다. 또한 Fig. 7에서 볼 수 있듯이, 본 연구에 사용한 모델이 고체산화물 연료전지의 전류-전압 특성뿐만 아니라 인가 전류에 따른 동특성도 실제 고체산화물 연료전지를 잘 반영한다는 것을 알 수 있었다.

Fig. 8 ~ Fig. 10은 고체산화물 연료전지/메탄 자열개질기 시스템에 300mA/cm²의 전류가 인가되

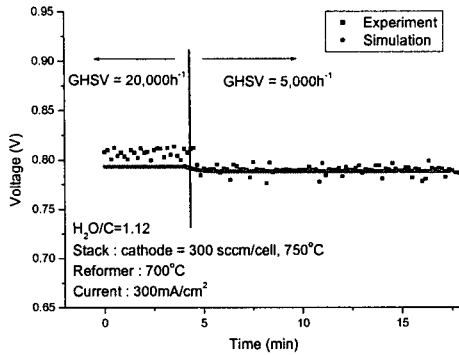


Fig. 8 Cell voltage as change of GHSV

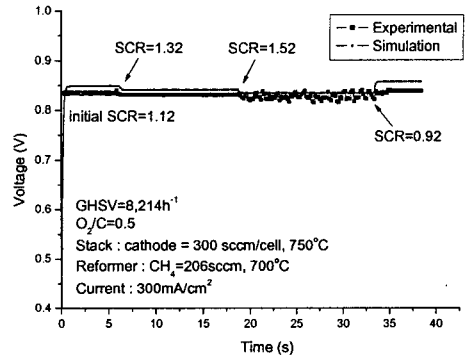


Fig. 10 Cell voltage as condition of H₂O/C

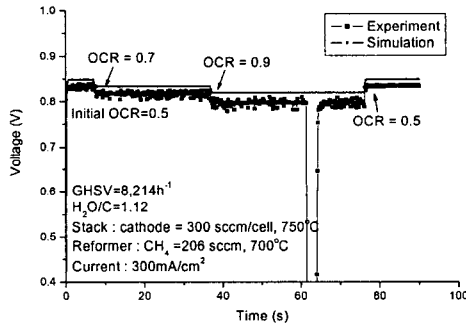


Fig. 9 Cell voltage as condition of O₂/C

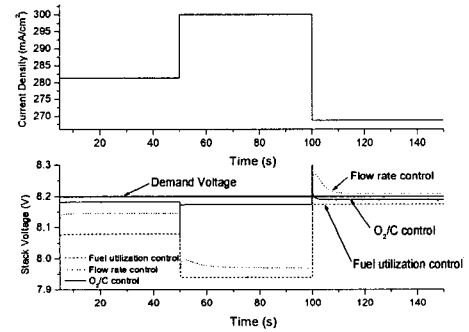


Fig. 11 Change of stack voltage as operation strategy

있을 경우, 개질기의 운전 조건인 GHSV(gas hourly space velocity), O₂/C, H₂O/C의 변화에 따른 시스템 출력 전압을 보여 주고 있다. Fig. 8은 개질기의 GHSV가 20000h⁻¹에서 5000h⁻¹로 감소하였을 때 고체산화물 연료전지의 전압 변화를 나타내고 있다. 실험과 시뮬레이션을 통해 개질기의 GHSV가 증가하면 단전지의 연료극에 공급되는 연료의 유량이 증가하여 유로내의 연료(수소와 일산화 탄소)의 분압이 증가하고, 물질전달한계에 의한 손실을 줄여 줄 수 있기 때문에 단전지의 전압이 증가하게 되는 것을 확인할 수 있었다. 이에 비해 O₂/C나 H₂O/C가 변화할 경우에는 조건에 따라서 개질기의 생성물(=연료전지 연료극에서는 반응물)의 분압이 변화하기 때문에 단전지의 전압에 영향을 미치게 된다. 즉, Fig. 9와 같이 O₂/C 감소함에 따라 개질기에서 생성되는 수소와 일산화탄소의 분압이 증가하게 되고, 증가

된 연료의 분압이 개방회로전압의 상승시킬 뿐만 아니라 활성화 손실을 감소시키기 때문에 단전지의 출력 전압이 상승하는 것을 확인할 수 있었다. 그러나 O₂/C와는 달리 H₂O/C가 감소하는 경우에는 개질기에서 생성되는 수소의 분압이 감소하여 출력 전압이 떨어지지만, 줄어든 수증기의 분압에 의한 개방회로전압의 상승효과가 더 크기 때문에 전체적으로 Fig. 10과 같이 출력 전압을 증가하게 된다.

Fig. 8 ~ Fig. 10를 통해 3가지 개질기의 운전 조건인 GHSV, O₂/C, H₂O/C 중에서 O₂/C가 고체산화물 연료전지/메탄 자연 개질기 시스템 운전에 중요한 제어 변수임을 확인할 수 있었다. 또한 이러한 결과를 통해 본 연구에서 제시한 연료전지/메탄 개질기 모델이 실제 시스템을 잘 모사한다고 판단할 수 있었으며, 이를 바탕으로 하여 본 연구에서 제시한 3가지 운전 전략에 대한 시

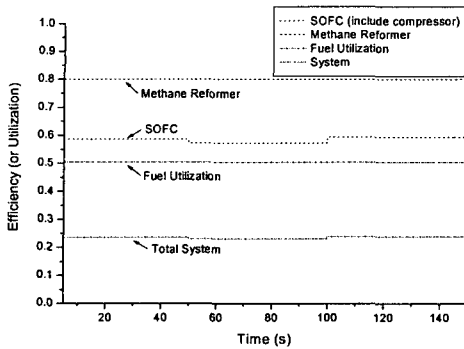


Fig. 12 Efficiency of each component and total system under fuel utilization control

시스템에 특성을 알아보았다.

5.3 운전전략에 따른 시스템 성능

Fig. 11은 시스템의 요구 전압이 8.2V라고 가정했을 경우, 3가지 운전전략에 대하여 인가 전류가 0.2678~0.3000A/cm²로 변화할 때 시스템의 전압 변화를 보여 주고 있다. 먼저 연료이용률 유지를 위한 연료유량제어(전략 1)일 경우를 살펴보면, 단지 인가 전류에 따른 연료소비량을 계산하여 스택에 공급되는 연료량이 2배가 되도록 하기 때문에 전류가 증가함에 따라 비가역적인 손실이 증가하고 스택 전압이 떨어지는 것을 확인할 수 있었다. 그러나 감소된 전압을 다시 회복하지 못하여 전 시간영역에 대해서 시스템의 요구 전압인 8.2V를 유지하지 못하는 것을 볼 수 있다. 이에 반해 전압유지를 위한 연료유량을 제어(전략 2)할 경우에는 인가 전류가 증가함에 따라 스택 전압이 감소하게 되고, PID 제어기가 요구 전압인 8.2V를 유지하기 위해 연료, 공기, 수증기의 유량을 일정한 비율을 유지하면서 증가시킨다. 증가된 유량은 검사 체적 내에서 반응물의 부분 압력을 상승시키고, 그로 인해 단전지의 개방회로전압의 증가와 활성화 분극 저항의 감소의 효과를 얻어 전체 시스템 전압이 증가하는 것을 볼 수 있다. 그러나 연료유량의 제어는 스택 전압을 변화시킬 수는 있으나, 전반적으로 요구 전압인 8.2V를 만족시키지 못하는 한계가 있다는 것을 볼 수 있다. 즉, 평판형 고체산화물 연료전지는 고분자 전해질형 연료전지(polymer electrolyte

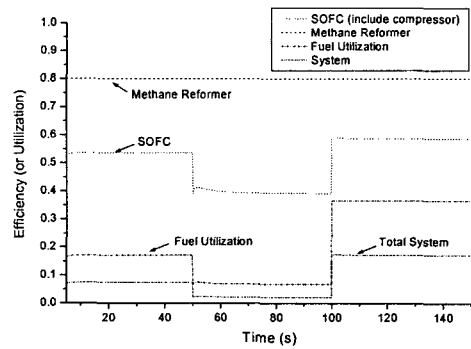


Fig. 13 Efficiency of each component and total system under flow rate control

membrane fuel cell)와는 달리 밀봉특성이 나쁘기 때문에 가압 조건이 아닌 상압조건에서 운전하게 되고, 그로 인해 유량 증가에 의한 스택내의 반응물의 분압 증가에는 한계가 있다. 그러나 전압 유지를 위한 O₂/C 제어(전략 3)인 경우에는 전 구간에서 인가 전류가 변화하더라도 대체적으로 시스템 전압이 요구 전압인 8.2V로 유지하는 것을 볼 수 있다. 이는 인가전류가 증가하여 시스템 출력 전압이 감소하게 되면 PID 제어기가 그 값을 보상하기 위해서 연료개질기의 O₂/C를 변화시켜, 개질기의 생성물 중 수소와 일산화탄소의 분압을 증가시키고 수증기의 부분분압을 감소시켜, 출력 전압을 증가시키는 것을 확인할 수 있었다.

Fig. 12는 연료이용률 유지를 위한 연료유량을 제어(전략 1)했을 경우, Fig. 11과 동일한 인가 전류의 변화에 따른 연동 시스템의 효율의 변화를 보여주고 있다. 인가전류가 증가함에 따라 연료 전지에 유입되는 연료량이 비례하여 증가하였기 때문에 전 시간 영역에서 연료이용률이 0.5로 유지되었고, 입력되는 O₂/C와 H₂O/C가 일정하기 때문에 개질기의 효율 또한 80%로 유지 되었다. 그러나 전류가 증가함에 따라서 비가역성의 증가로 인해 SOFC 스택의 효율은 감소하였다. 전체 시스템 효율은 고전류에서 약간 감소하였으나 대체적으로 24%를 유지하는 것을 확인할 수 있다.

전압 유지를 위해 연료유량을 제어(전략 2)했을 경우, Fig. 13에서 볼 수 있듯이 개질기에 들어가는 O₂/C와 H₂O/C의 비율이 일정하기 때문에 개질기의 효율은 80%로 일정하나, 고체산화물 연료전지 시스템 효율과 연료이용률이 크게 낮아지는

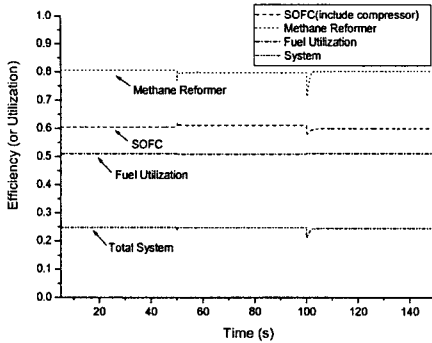


Fig. 14 Efficiency of each component and total system under O_2/C control

것을 볼 수 있다. 이는 PID 제어기가 전류증가에 따른 출력 전압 감소를 보상하기 위해 많은 양의 연료와 공기를 연료전지 및 연료개질기에 공급하게 되고, 이렇게 증가된 연료량과 공기량은 연료이용률의 감소 및 공기 압축기의 소비 출력의 증가에 의한 연료전지 시스템 효율 감소를 의미한다. 따라서 전체 시스템의 효율은 약 10% 내외로 크게 떨어진 것을 확인 할 수 있었다.

이에 반해, Fig. 14에서 볼 수 있듯이 O_2/C 제어(전략 3)인 경우에는 O_2/C 가 변화함에 따라서 개질기 효율, 연료전지 스택 효율, 연료이용률이 약간 변화되었으나, 전체 시스템 효율이 약 25%로 유지 되는 것을 확인할 수 있었다. 즉, 전압유지를 위한 연료유량제어(전략 2)가 유량 증가에 따른 연료전지의 성능을 향상시키는 것과는 달리, O_2/C 제어(전략 3) 경우에는 줄어든 O_2/C 가 개질기 자체에서 수소와 일산화탄소의 분압을 증가시키기 때문에 스택의 전압 유지뿐만 아니라 연료이용률 측면에서도 다른 두 운전 전략에 비해서 뛰어나다는 것을 확인할 수 있었다. 특히 DC/DC 변환기(DC/DC converter) 혹은 DC/AC 변환기(DC/AC converter)를 고려했을 경우, 고체산화물 연료전지에서의 전압이 높을수록 변환기의 승압 운전 효율이 높아지기 때문에 O_2/C 제어가 더욱 필요한 제어 전략이라 할 수 있다. 그러나 연료개질기는 O_2/C 의 변화에 대해서 개질기 촉매층 내의 열분포나 수소 전환 효율이 아주 민감하게 변화하기 때문에 실제 시스템 운전에서는 개질기의 온도 제어도 중요한 문제가 될 것이다.⁽⁷⁾

3가지 운전 전략에 대한 연동 시스템의 시뮬레

이션 결과에서 시스템 전기 효율이 25% 이하로 낮게 나온 가장 큰 이유는 낮은 연료 이용률 때문이다. 즉, 현재 평판형 고체산화물 연료전지 스택의 밀봉 기술로는 고분자 전해질형 연료전지와 같은 0.8 이상의 연료이용률을 만족시키는 힘들다. 바꾸어 말하면 만약 고체산화물 연료전지의 밀봉기술이 개선되어 고분자 전해질형 연료전지와 비슷한 수준까지 올라가게 되면 시스템 전기효율이 40%에 가깝게 될 수 있다. 따라서 고체산화물 연료전지/메탄 개질기 시스템의 상용화를 위해서는 시스템 운전 전략을 통한 최적화뿐만 아니라 스택의 밀봉에 대해서도 깊이 있는 연구가 필요할 것이다.

6. 결론

본 연구에서는 고체산화물 연료전지/메탄 자열개질기 연동 운전 실험을 바탕으로 시스템을 모델링하였고, 3가지 운전 전략에 대해서 전압 특성 및 효율에 대해서 알아보았다.

3가지 운전 전략을 통해서 연동 시스템의 특성을 분석한 결과 다음과 같은 주요 결과들을 도출할 수 있었으며 이는 실제 고체산화물형 연료전지/연료개질기 연동 시스템의 운전에 있어서 중요한 기초자료가 될 것이라 판단되었다.

(1) 고체산화물 연료전지/메탄 자열개질기 연동 운전 실험을 통해 고체산화물 연료전지에서는 수소 뿐만 아니라 일산화탄소도 좋은 연료가 되는 것을 확인하였고, 연동 시스템의 출력 전압은 연료개질기의 H_2O/C 보다 O_2/C 에 의해서 민감하게 변화하였다.

(2) 연료이용률 유지를 위한 연료유량제어(전략 1)를 통해 연동 시스템을 운전할 경우, 출력 전압을 일정하게 유지하지는 못하였지만, 상대적으로 높은 시스템 전기효율을 얻을 수 있었다.

(3) 전압 유지를 위한 연료유량제어(전략 2)를 통해 연동 시스템의 전압을 제어할 수 있었으나, 운전에 필요한 연료, 공기의 양이 다른 전략에 비해서 매우 컸기 때문에 가장 낮은 시스템 전기효율을 보였다.

(4) 전압유지를 위한 O_2/C 제어(전략 3)를 이용하여 연동 시스템을 운전했을 경우, 가장 높은 시스템 전기 효율을 얻을 수 있었다. 그러나 실제 O_2/C 비율을 변화 시키면 촉매층의 온도 분포

나 수소 전환 효율에 영향을 미치기 때문에 열 수급을 고려한 전체 연동 시스템 성능을 고려해서 판단해야 될 것이다.

후 기

본 연구는 한국에너지기술연구원, KISTEP, BK21의 지원의 결과이며 이에 감사드립니다.

참고문헌

- (1) Larminie, J. and Dicks, A., 2003, Fuel Cell Systems Explained 2nd Edition, John Wiley & Sons, Inc.
- (2) Achenbach, E., 1994, "Three-dimensional and Time-dependent Simulation of a Planar Solid Oxide Fuel Cell Stack," *Journal of power sources*, Vol. 49, No. 1/3, pp. 333~348.
- (3) Massardo, A. F. and Lubelli, F., 2000, "Internal Reforming Solid Oxide Fuel Cell-Gas Turbine Combined Cycles (IRSOFC-GT): Part A - Cell Model and Cycle Thermodynamic Analysis (98-GT-577)," *Journal of engineering for gas turbines and power*, Vol. 122, No. 1, pp. 27~35.
- (4) Pathapati, P.R., Xue, X. and Tang, J., 2005, "A New Dynamic Model for Predicting Transient Phenomena in a PEM Fuel Cell System," *Renewable energy*, Vol. 30, No. 1, pp. 1~22.
- (5) Sungkwang Lim, 2005, "Autothermal Reforming of Natural Gas for Fuel Cells," Master thesis, KAIST, Korea.
- (6) Hiraad Taherparvar, John A. Kilner, Richard T. Baker and Mortaza Sahibzada, 2003, "Effect of Humidification at Anode and Cathode in Proton-Conducting SOFCs," *Solid State Ionics*, Vol. 162/163, pp. 297~303.
- (7) Sheldon H.D. Lee, Daniel V. Applegate, Shabbir Ahmed, Steven G. Calderone and Todd L. Harvey, 2005, "Hydrogen from Natural Gas : Part I-Autothermal Reforming in an Integrated Fuel Processor," *Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 30, No. 8, pp. 829~842.