

모델링 및 전산모사를 통한 연료전지공정의 제어전략에 관한 연구

Modeling, Simulation and Control Strategy for the Fuel Cell Process

°이상범 · 이익형 · 윤인섭

서울대학교 화학공학과 (Tel: 873-2605; Fax: 884-0530; E-mail: Tiger@pslab.snu.ac.kr)

*서울보건전문대학 산업안전과 (Tel: 0342-40-7157; Fax: 0342-40-7158)

Abstracts This study focuses on the optimal operation and control strategy of the fuel cell process. The control objective of the Phosphoric Acid Fuel Cell (PAFC) is established and dynamic modeling equations of the entire fuel cell process are formulated as discrete-time type. On-line optimal control of the MIMO system employs the direct decomposition-coordination method. The objective function is modified as the tracking form to enhance the response capability to the load change. The weight factor matrices Q,R, which are design parameters, are readjusted. This control system is compared with LQI method and the results show that the suggested method is better than the traditional method in pressure difference control.

Keywords Fuel cell modeling, Fuel cell control, Decomposition-coordination method, On-line optimal control

1. 서 론

연료전지는 화학에너지를 전기에너지로 변환시키는 장치다. 높은 전환율과, 부하변동에 대한 빠른 응답성, 저공해의 장점때문에 미래의 발전방식으로 각광받고 있다. 단기간에 건설이 가능하고 입지면적도 작으며 필요한 곳에 적정 용량의 분산설치가 가능해 송배전 설비의 비용이 적다. 연료전자는 전해질에 따라 고체산화물(Yttrium zirconate), 용융탄산염(Fused carbonates), 인산형(H_3PO_4) 및 알칼리형(NaOH)으로 구분된다. 연료전지개발은 1986년부터 한국동력자원연구소에서 인산형 연료전지를 연구¹⁾한 이래 용융탄산염 연료전지(MCFC), 고체전해질연료전지(SOFC) 및 고분자전해질연료전지(PEMFC)²⁾ 등이 연구되고 있으며, 인산형 연료전지³⁾가 실용화 단계에 있다. 본 연구에서는 부하변동이 있을 때 공정을 안정시키면서 빠른 부하추종을 갖는 제어와 연속 및 안전운전을 위한 최적제어를 연구했으며, 직접분할~조정법으로 온라인 최적제어를 수행하였다.

2. 연료전지공정

2-1. 연료전지공정의 구성

연료전지공정은 연료처리공정과 전지스택공정으로 구성된다. Fig.1에 원리를 나타내었다. 연료처리공정은 연료가스를 수소로 만드는 개질기와, 부산물인 CO를 CO_2 로 변환시키는 변환기가 있다. 메탄과 스템을 1 : 3~4의 비로 혼합해 800°C, 5기압의 니켈촉매 개질기로 개질시킨후, 생성된 CO를 약 350°C 및 250°C의 변성기로 보내 CO_2 와 H_2 로 변환시킨다. 개질수소에 함유된 수분은 기액분리기로 10%이하로 줄인다. 스택의 양극으로 공급되는 수소함량은 70%이며 백금촉매상으로 공급된다. 스택은 양극, 음극, 전해질 및 냉각판으로 구성된다. 인산형 전지는 두극 사이에 전해질 층이 있고 양극으로 수소를 보내면 촉매층에서 이온으로 분해된다. 이온은 전해질층을 이동해 음극으로, 전자는 외부회로를 통해 음극으로 가면서 전류가 발생한다. 음극판에 보내지는 공기(산소)와 수소이온, 전자가 촉매층에서 수증기가 된다. 전해질은 SiC에 인산을 함침시킨 박막형태이며 온도가 200°C 이상이면 인산이 휘발해 기능을 상실하며, 양극간 압력차가 0.1atm

이상이면 박막이 파괴되어 수소와 공기가 직접 접촉해 폭발한다. 따라서 스택을 조업온도 이내로, 압력차를 0.05 atm이하로 유지하는 것이 필요하다.

2-2. 연료전지공정의 운전

연료전지 공정의 제어는 제어밸브로 스택에 공급되는 수소, 공기를 조절한다. 원료가스는 물질수지식에 따라 조절되며, 스템은 수소에 따라 비례제어로서 조절된다. 개질기의 열량은 버너연료와 스택 출구가스를 연소시켜 공급하고, 온도는 버너연료 공급밸브를 조절해 유지한다. 스택의 열은 냉각수 유량을 조절함으로써 온도를 일정하게 유지한다. 전류, 전압 제어는 물질수지식으로 제어되며, 온도, 압력이 높을수록 효율은 올라간다. 극간 압력차를 0.03atm이내로 하기 위해 기액분리기의 압력을 개질기에 들어가는 원료의 유량으로 조절한다. 일정온도를 유지하기 위해 반응열, 전지저항으로 인한 열은 제거한다. 스택의 내부는 180~190°C를 유지하도록 한다.

3. 직접분할조정법

직접분할-조정법은 대규모공정을 분할-조정하여 해를 구

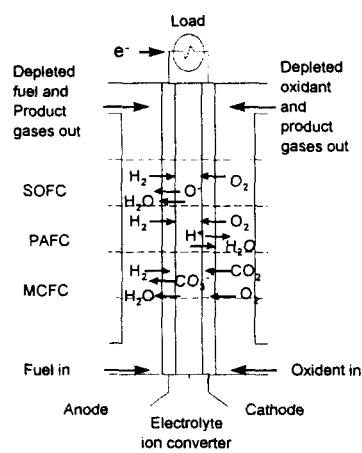


그림1. 연료전지의 구조

Fig.1. Schematic view of basic fuel cell structure

하는 방법으로 on-line 최적화에 적합하다. direct gradient approach로 해를 구하여 stationarity condition의 일부분을 매개변수화하여 분할한다. 최적제어값은 성능함수 J 가 다음 1차 stationarity condition 을 만족할 때의 값이다.

$$\frac{\partial J}{\partial u} = 0 \quad (1)$$

이 식을 직접 풀기가 어려우므로 다음처럼 분할한다.

$$J = J_d + \bar{J}_d \quad (2)$$

공정의 모델식을 선형으로 표시하면,

$$\begin{aligned} x_{k+1} &= Ax_k + Bu_k \\ x \in R^n, u \in R^m \end{aligned} \quad (3)$$

성능함수는 다음과 같다.

$$\begin{aligned} J &= \frac{1}{2} \sum_{k=0}^{K-1} x_{k+1}^T Q x_{k+1} + u_k^T R u_k \\ \text{with } Q &\geq 0, R > 0 \end{aligned} \quad (4)$$

이 식을 대입하고 stationarity condition을 분할하면,

$$\begin{aligned} \frac{\partial J}{\partial u_k} &= \frac{\partial J_k}{\partial u_k} + \frac{\partial \bar{J}_k}{\partial u_k} = 0 \\ \forall k &= 0, K-1 \end{aligned} \quad (5)$$

이 되고 k 번째 시간에 대한 성능함수는

$$J_k = 1/2(x_{k+1}^T Q x_{k+1} + u_k^T R u_k) \quad (6)$$

이며, 여기서 도입되는 조정자는 다음과 같다.

$$\rho_k = \frac{\partial \bar{J}_k}{\partial u_k} \quad (7)$$

하위계층의 k 시간 번째의 제어값 u_k 는 다음과 같다.

$$u_k = \Gamma x_k + \theta_k \quad (8)$$

$$\Gamma = -(B^T Q B + R)^{-1} B^T Q A \quad (9)$$

$$\theta_k = -(B^T Q B + R)^{-1} \rho_k \quad (10)$$

상위계층에서는 매개변수인 조정자를 반복해서 구한다.

$$\begin{aligned} \rho_k &= \sum_{l=k}^{K-1} (B^T \tilde{A}^{T(l-k)} Q x_{l+1} \\ &\quad + B^T \tilde{A}^{T(l-k-1)} \Gamma^T R u_l) \end{aligned} \quad (11)$$

조정자를 하위계층에 보내 제어값을 구한다. 하위계층은 분할된 문제를 풀어 local제어를, 상위계층은 매개변수를 갱신하는 조정자 역할로 전체공정을 고려한 on-line 제어를 한다. 선형추적제어의 성능함수는 다음과 같다.

$$\begin{aligned} J &= \frac{1}{2} \sum_{k=0}^{K-1} (x_{k+1} - X_{SET,k+1})^T Q \times \\ &\quad (x_{k+1} - X_{SET,k+1}) + u_k^T R u_k \\ \text{with } Q &\geq 0, R > 0 \end{aligned} \quad (12)$$

$X_{SET,k+1}$: set point at time $k+1$

성능함수는 quadratic형이다. 가중치행렬 Q, R 은 제어기 설계파라미터이다.⁴⁾ Q, R 은 조절성능및 제어값의 변화에 대한 가중치에 대한 절충을 나타내는 값으로, 실제 제어에서는 Q, R 을 조절해 상태값과 제어값이 주어진 범위내에 있도록 한다.

4. 메탄올 전지공정의 모델링 및 모사

동적 모델링을 동력자원 연구소의 메탄올 개질장치⁵⁾와 비교

하였다. 제원은 Table 1.과 같다.⁶⁾ 메탄을 공정의 이산 상태식에서 상태값 8개, 조작변수 5개의 다변수 입출력제어계를 이루었으며, 편차변수는 Table 2.에 정리하였다. 온도를 270°C로 유지해 전환율을 약 98%로 하였고, 스택에서는 부하에 따른 유량을 조절하고 양극간 압력차를 0.03atm이하로 하였다. 스팀은 메탄올에 따라 비례제어로 1:1.3으로 하였다. 버너 연료양은 실제온도와 설정치간의 차이로 제어밸브로 조절한다. 극간 차압은 양극 출구 유량을, 전체압력은 음극 출구 유량을 조절해 유지하였다. Table 3.은 정상상태의 모사 결과를 실험값⁷⁾과 비교한 것이다.

다음은 메탄을 전지의 공정 모델식을 세워 비교하였다. 버너 수지식 6개, 개질기 수지식 10개, CO변성기의 모델식 3개, 스택의 계산식 10개, 부하식 1개로 모두 25개의 변수와 25개의 식이며, Newton-Raphson 방법으로 비선형 방정식을 풀었다. Table 4.는 각 부하에서의 조성을 문헌치⁸⁾와 비교한 것이다. 모사결과 개질기 출구 수소조성이 더 높으며 정격부하에서는 비슷하다. 그러나 부하가 줄수록 수소와 CO 조성이 더 크다. 이는 정격부하 이하에서는 적은 양을 개질하여 전환율이 상승함을 보여준다. 변성기를 나온 CO농도는 모두 문헌치보다 높으며, 이는 문헌의 개질기는 단열이나 본 모델에서는 정온으로 모델링해서 온도가 높기 때문이다. 메탄 유량은 부하에 대해 직선비례관계보다 더 증가하는데, 이는 부하증가에 따른 전류밀도 증가로 전압강하가 일어나고, 이로 인해 요구되는 전력을 충족시키는 개질가스의 양이 더 증가하기 때문이다. 버너의 연료도 배기ガ스의 현열과 개질양의 증가에 따라 더 증가한다. 결과는 문헌치와 비슷하며 전체적인 유량은 수지식을 잘 만족한다.

5. 연료전지공정의 성능 모사

5-1. 제어파라미터 Q, R 을 이용한 최적제어

제어목표는 다음과 같다. 개질기온도는 800°C, 전환율은 90%로 하고, 스택 압력차를 0.03atm이하로, 전압을 일정범위로 제어해 전극수명을 늘리게 하였다. 전환율 제어는 온도를 제어하는 inferential제어로 하였다. 개질기 온도가 일정하면 전환율은

표 1. 메탄올 전지 공정의 개질기 제원

Table 1. Design characteristics of reformer in methanol system

Items	Characteristics
Reactor size	50 cm
Reactor inner diameter	25 cm
Pressure drop	Ignore
Weight of catalyst	6 kg
Water/methanol mole ratio	1.3
Reforming fuel flow rate	5.5 (l/h)
Reformed gas flow rate	7.73Nm ³ /h(Hydrogen 5.8 Nm ³ /h)

표 2. 메탄올 전지 공정의 편차 변수

Table 2. Deviation variables for methanol fuelcell process

	variables name	deviation variables	unit
state variables	temp. of burner	X1 = T _B - T _{B,S}	°C
	temp. of preheater	X2 = T _E - T _{E,S}	°C
	temp. of reformer	X3 = T _R - T _{R,S}	°C
	pressure of hold current	X4 = P _H - P _{H,S}	atm
	H ₂ mol fraction	X5 = I _M - I _{M,S}	KA
	pressure of anode	X6 = X _{H2} - X _{H2,S}	fraction
	pressure difference	X7 = P _A - P _{A,S}	atm
manipulated variables	fuel flowrate	U1 = F _{FUEL} - F _{FUEL,S}	mol/s
	feed(CH ₃ OH) flowrate	U2 = F _{FEED} - F _{FEED,S}	mol/s
	current variation	U3 = μ _{IM} - μ _{IM,S}	KA/s
	anode outlet flowrate	U4 = F _{AO} - F _{AO,S}	mol/s
	cathode outlet flowrate	U5 = F _{CO} - F _{CO,S}	mol/s

표 3. 메탄을 개질 공정의 결과 비교 : 부하 5.9Kw
Table 3. Comparison of methanol reforming result : Load 5.9Kw

	Variables	Reference value	Simulation result
Reformer	conversion (%)	98.1	96.81
	H ₂ (%)(dry basis)	74.5	74.49
	CO(%) (dry basis)	2.21	2.05
	CO ₂ (%) (dry basis)	23.29	23.35
Gas flow (mol/h)	Feed flow rate	88.13	88.13
	Fuel flow rate	50.10	49.97
	H ₂	251.45	249.1
	CO	7.44	6.857
	CO ₂	77.77	78.47

표 4. 연료전지 비선형 방정식의 모사 결과 : 부하 25Kw
Table 4. Simulation Result of Fuel Cell Nonlinear Equations : LOAD 25Kw

	Reference Value	Simulation Result
Reformer	Temp(°C)	IN:729 OUT:827
	H ₂ (%)	60.8
	CO	16.8
	H ₂ O	18.4
	CO ₂	2.8
	CH ₄	1.0
	N ₂	0.2
High Shift Converter	Temp	IN: 247 OUT:369
	H ₂	66.4
	CO	7.0
	H ₂ O	13.9
	CO ₂	11.4
	CH ₄	1.0
	N ₂	0.2
Low Shift Converter	Temp	IN: 165 OUT:239
	H ₂	72.6
	CO	1.0
	H ₂ O	7.9
	CO ₂	17.4
	CH ₄	1.0
	N ₂	0.1
Cathode off-gas	Temp	177
	H ₂	34.6
	CO	2.3
	H ₂ O	18.9
	CO ₂	41.5
	CH ₄	2.3
	N ₂	0.4

일정하다고 보면, 메탄이 증가하면 온도감소로 전환율도 감소하는 것으로 보았다. 직접분할-조정법을 써서 공정을 분할하고 각 공정을 local controller로 제어하는 계층적 탈중앙 집중제어기를 설계하였다. 각 local제어기는 개질기 온도, 스택압력차 제어를 중심으로 설계하였다. 해의 검정을 위해 이차계획법의 해를 구해 비교하였다. 제어를 위한 연료전지 공정의 이산상태식의 변수는 상태값 11개, 조작변수 7개의 다변수 입, 출력 제어계이다.

부하가 상승할 때 전류 가중치 값을 증가시킬 경우 전력의 변화를 나타낸 그래프가 Fig. 2.이다. 전류 가중치가 클수록 부하추종 성능이 향상되는 것을 알 수 있다. 부하가 증가하는 경우 전류 제어가중치 값을 증가시킬 때 전력의 변화를 나타낸 그래프는 Fig. 3.이다. 전류 제어가중치가 클수록 전력값의 변화가 작

고 완만히 상승한다. 조작변수, 상태값에 제한조건이 있는 경우는 먼저, 임의로 Q, R을 놓고 해를 구한다. 조작변수 변화량은 R값이 커질수록 완만해져 혼용한계내에 들어오고, 이 때 상태값이 혼용한계 내의 값인지 조사하였다. 한계를 벗어나면 상태가 중치 Q를 조절하여 혼용한계내의 값을 갖도록 하였다. Q값을 크게 할수록 설정치값에 더 접근한다. 25Kw에서 100Kw로 부하가 변할 때 최적해를 구해 보면, 먼저 Q, R값을 주고 해를 구하였다. 조작변수 가중치를 증가시켜 변화를 줄이고, 다른값은 변화 없이 R을 증가시킨다. 상태값을 설정치에 접근시키도록 가중행열을 증가시켜 해를 구하였고, 제한조건을 만족하는 값을 얻었다. 상태값 및 조작변수가 제한조건을 만족하도록 Q, R의 값을 조절하여, 부하의 변동이 25%에서 100%로 상승할 때와 100%에서 25%로 감소하는 두 경우에 대해 모두 만족하는 제어결과를 얻었으며 특히 양단간의 압력차 제어에서 좋은 결과를 보였다.

5-2. 탈중앙식 분할

두 부공정으로 분할해서 하나는 개질기 및 기액분리기로, 상태값은 개질기온도, 기액분리기압력이며 제어값은 메탄 및 버너유량으로 하였다. 다음 부공정은 스택으로 상태값은 음극압력, 압력차, 전극 유량밸브이고, 제어값은 스택유량 및 배출 밸브이다. 각 공정과 매 시간마다 조정자가 계산되어 각 공정에서 open loop 제어값으로 사용된다. 중앙집중방법과 탈중앙 집중방법의 해는 큰 차이가 없다. 직접분할-조정법으로 탈중앙 집중방법을 쓸 경우 각 공정은 현재 상태만으로 feedback제어를 하고 전체공정을 고려한 값은 조정자로 보완 받으므로, 대규모 공정의 온라인 제어에 최적제어를 수행할 수 있음을 나타낸다.

6. 1Mw 연료전지 모델링 결과와의 비교

Nishitani⁹⁾의 1Mw연료전지 모사 결과와 비교하였다. 이 전지는 190°C, 3.3atm 고온고압형이다. 제어방식은 적분형 최적조절제어기(LQI)이며, K_P, K_I는 다변수 제어계소프트웨어 "ASPROC"으로 계산하였다.¹⁰⁾ Fig.4.는 부하가 증가할 때 스택의 과도상태이다. 부하에 따른 과도특성은 5초 만에 완결되었으나 압력차는 혼용압력차 0.03atm을 넘어 0.05atm까지 이른다. Fig.5.는 본 연구에 의한 결과이다. 과도특성은 대부분 5초만에 완결되었으나 수소및 공기 유량, 음극내 압력은 약간 변동이 있다. 그러나 압력차는 혼용압력차이내를 유지하여 본 연구의 방법이 더 안정한 부하추종법임을 알 수 있다.

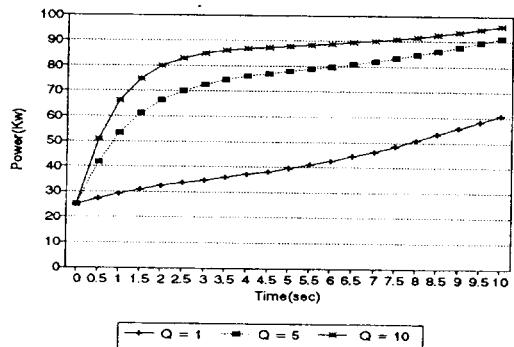


그림 2. 부하변동에 따른 Q 조정 모사 결과
Fig. 2. Simulation result of Q Tuning for load increase (Load:from 25KW to 100KW, Q=1, R=10, Q_{current}=1, 5, 10)

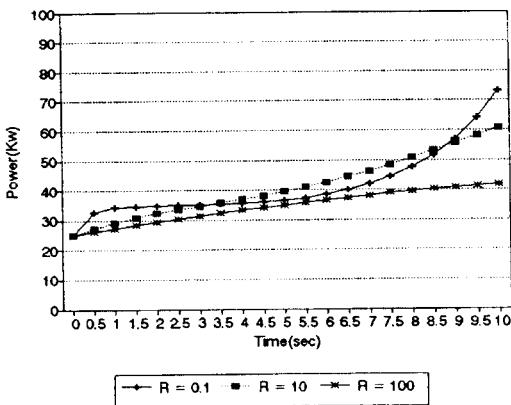


그림 3. 부하변동에 따른 R 조정 모사 결과

Fig. 3. Simulation result of R Tuning for load increase
(Load:from 25KW to 100KW,Q=1,R=10,R_{current}=0.1,10,100)

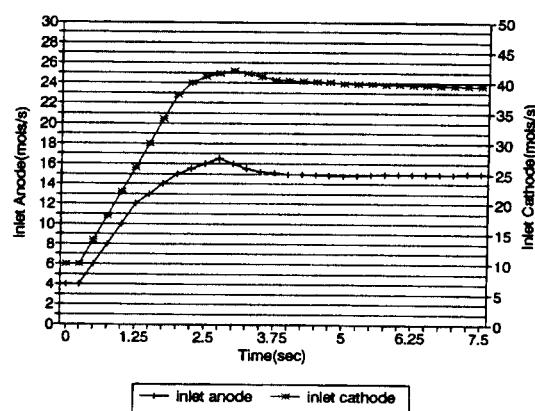
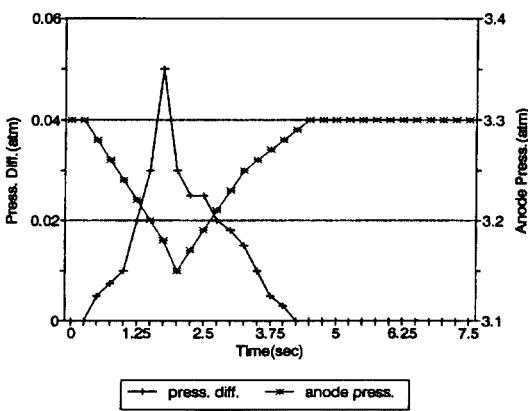
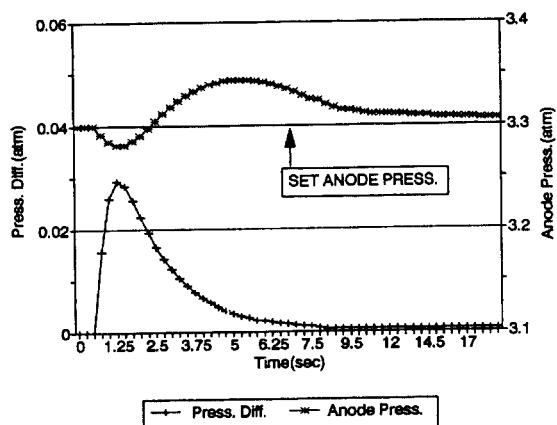


그림 4. 1Mw 연료 전지 제어 모사 결과

Fig. 4. Simulation results of 1Mw fuel cell control

7. 결 론

현재 국내 연료전지 시운전은 상압형 연료전지이나 본 연구에서 고온고압형 인산형 연료 전지의 제어기술에 대해 제어전략을 세우고 우수한 제어성능을 보임으로써 전지효율이 높은 고온고압형의 운전이 가능함을 보였다. 최적제어는 모델식에 근거하여 제어를 하므로 제어모델은 실제공정운전의 정보가 많을수록 정확하게 공정을 나타내고 최적제어를 할 수 있다. 본 연구의 제어

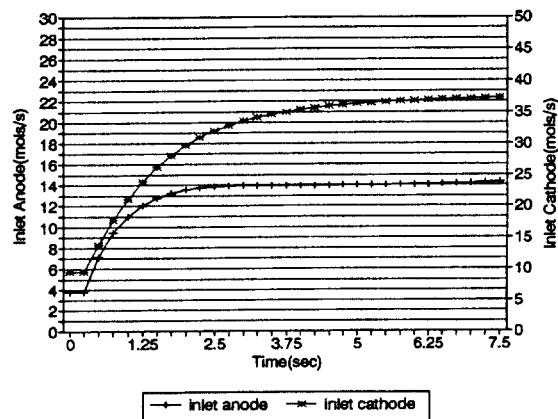


그림 5. 1Mw 연료 전지 제어 모사 결과
Fig. 5. Simulation results of 1Mw fuel cell control

모델식은 실제 운전데이터를 바탕으로 구성되었으며, 그 제어성능이 기존의 방법보다 더 우수함을 확인하였다.

참 고 문 헌

- [1] 최수현외, 인산형 연료전지 발전에 관한 기초실험 연구, 한국전력공사 기술 연구원, KRC-85G-J03, 1989.
- [2] 정종식, 고분자 전해질형 연료전지 스택개발, 통상산업부, 1994
- [3] A. J. Appleby, F.R.Foulkes, Fuel Cell Handbook, Van Nostrand Reinhold, 1989
- [4] R. Soeterboek, Predictive Control : A Unified Approach, Prentice-Hall, pp2, 1991.
- [5] 정두환외, 5kw급 인산형 연료전지 발전용연료개질기의 설계 및 운전, Energy R&D, Vol. 13, No. 1, pp38, 1991.
- [6] 신동열외, 인산형 연료전지 발전설비 성능개선 연구(최종보고서), 한국전력공사 기술연구원, KRC-89G-J06, 1992.
- [7] 정두환, 신동열, 임희천, 인산형 연료전지용 메탄을 연료개질기의 운전 특성, Energy Eng. J., Vol. 2, No. 2, pp200~207, 1993.
- [8] Mitsubishi, Fuel Cell Power Generation System, New Energy Development Organization, Apr. 1984.
- [9] H. Nishitani, Y. C. Wan, and E. Kunugita, Plant - Wide Control of a Fuel Cell Power Plant, Kagaku-Kogaku Ronbunshu, Vol.16, No.5, pp1006 - 1012, 1990
- [10] H. Nishitani, M. Hayashi and A. Murata, ASPROC Manual, Dept of Chem. Eng., Osaka Univ. 1987.