

# 25 kW급 용융 탄산염 연료 전지 스택의 상압 및 가압 운전

고준호· 서혜경· 임희천\*

## Atmospheric and Pressurized Operation of a 25 kW MCFC Stack

Joob-Ho Koh, Hai-Kung Seo, and Hee Chun Lim

**Key Words:** high temperature fuel cell, molten carbonate, MCFC, pressurization, stack simulation

### Abstract

As a part of the ongoing effort towards commercial application of high-temperature fuel cell power generation systems, we have recently built a pilot-scale molten carbonate fuel cell power plant and tested it. The stack test system is composed of diverse peripheral units such as reformer, pre-heater, water purifier, electrical loader, gas supplier, and recycling systems. The stack itself was made of 40 cells of 6000 cm<sup>2</sup> area each. The stack showed an output higher than 25 kW power and a reliable performance at atmospheric operation. A pressurized performance was also tested, and it turned out the cell performance increased though a few cells have shown a symptom of gas crossover. The pressurized operation characteristics could be analyzed with numerical computation results of a stack model.

### 1. 서 론

석탄 가스화와 연계한 복합 발전이 가능한 외부 개질(external reforming)형 용융 탄산염 연료 전지(molten carbonate fuel cell : MCFC)는 천연 가스, 석탄 가스등 다양한 연료를 사용할 수 있고, 환경 오염물 배출이 적으며 고효율 발전을 할 수 있어 전력 사업의 발전 분야에 적용 가능성이 큰 저공해 고효율의 새로운 발전 방식이다. 미국, 일본, 유럽등 선진 각국에서 연구 개발이 활발히 진행되고 있는데 미국의 경우 250 kW의 용량을 갖는 스택을 개발 운전 시험중이고 플랜트로는 1 MW급 설비의 건설을 준비중이다. 일본 역시 상용 규모의 250 kW급 스택을 개발하여 이를 이용한 MW급 실증 플랜트 건설을 완료하고 현재 시운전 중에 있다. MCFC 발전 시스템은 고온에서 동작되므로 내열성, 내식성 재료 개

발 등 기술적인 어려움으로 인하여 본격적인 상용화는 21세기 초반이나 가능하리라 평가되고 있다. 그러나 이 발전 방식의 잠재적인 효율 가치로 인하여 선진 각국에서 많은 연구 노력을 기울여 문제점을 해결하고 본격적으로 실용화하여 보급하려는 노력은 계속되고 있다.

용융 탄산염 연료 전지 기술은 그 부가 가치가 높고 실용화시에 기력 발전 설비를 대체 할 수 있는 등 그 파급 효과가 크기 때문에 에너지 분야의 국가 기반 기술로서 중요성이 있으며 또한 그 제작 기술이 아직은 개발 단계에 있기 때문에 선진국에서도 보호하는 기술로 현재 이 기술의 사업화 기반을 위하여 국내에서 자체적인 연구 개발 노력을 기울여 왔다. 그 결과 2 kW급 MCFC 스택을 개발 3000시간 이상의 운전 시험을 통하여 외부 개질형 MCFC 스택의 기초 기반 기술을 확립하였으며, 현재 25 kW 스택 및 발전 시스템을 운전 시험 중이다. 여기서는 최근에 개발하여 시험중인 25 kW급 MCFC 발전 시스템의 상압 및 가압 운전 특성을 소개하고자 한다.

\* 한전 전력연구원 발전연구실  
연소신발전그룹  
대전시 유성구 문지동 103-16

## 2. 시험용 MCFC 플랜트 설치

### 2.1 시스템 구성

25 kW 용량 탄산염형 연료 전지(MCFC) 발전 시스템은 스택의 운전에서 필요로 하는 유량, 온도 및 공급되는 반응 가스의 조성을 기본으로 하여 공정 해석을 거친 후 각종 보조 기기 규격을 결정하였다. 전체적인 설비 구성도는 그림 1과 같다. 연료극(음극)과 산소극(양극)에는 각각 전기 화학 반응에 필요한 가스 혼합물이 공급되는데, 특히 음극에는 탄소 석출 방지를 위하여 반응 가스와 함께 스팀 발생기로부터 10%이상의 수분을 공급한다. 본 연구원에서 개발한 25 kW MCFC 시스템은 장기 연속 운전 및 평가를 위한 설비로서, 연료 가스 공급 설비와 촉매 연소 및 개질기를 포함하는 가스 공급부, 공급 가스 예열부, 연료 전지 본체, 배가스 처리 시스템 등으로 구성되었고, 이들 운전 설비에 전력을 공급하는 유틸리티 및 가스 저장 설비가 설치되었다. 가스 공급부는 가스 저장 설비로부터 공급되는 수소, 산소, 이산화탄소, 질소 혹은 공기 압축기로부터의 공기 등을 정확한 유량으로 공급, 적정한 비율로 혼합하여 스택 내로 공급한다. 또한 원활한 운전을 위한 제어 및 계측 시스템을 설치하였으며, 운전 중 발생할 수 있는 위험 요소를 제거하기 위하여 안전 설비로 보호 설비 및 운전 상태를 감시할 수 있는 운전 감시 설비도 설치하였다. 전체적인 설비의 흐름은 다음과 같다.

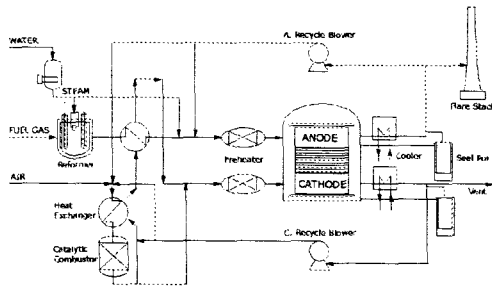


그림 1. 25 kW MCFC 시스템 구성도

### 2.2 시스템 구성 기기 기능 및 사양

#### 2.2.1 가스 공급부

연료극 가스 공급 장치는 수소를 얻기 위한 외

부 개질기를 중심으로 하여 천연가스에 포함된 황 성분 제거를 위해 탈황 설비와 스팀 발생기를 포함한다. 공기극 가스는 공기 압축기를 통하여 공급되는 공기와 가스 저장실에서 공급되는 CO<sub>2</sub>를 혼합한 것으로 사용한 공기 압축기 용량은 350Nm<sup>3</sup>/h 이었다.

#### 2.2.2 공급 가스 예열부

연료극 및 산소극 가스는 각각 전기 히터를 통과하면서 약 580°C까지 가열되도록 설계되었다. 이에 필요한 연료극 가스 예열기의 용량 22kW이며 37.06~47.65kg/hr의 유체 처리량을 기준으로 하였다. 공기극 가스 예열기의 용량은 24kW 2기로서 유체량 380kg/hr의 유체 처리 능력을 기준으로 한다. 예열기의 내부 재질은 Inconel, vessel은 SUS 304이며, 설계 압력 및 온도는 45kg/cm<sup>2</sup> 과 700°C이다. 스팀 발생을 위해 공급되는 물은 순수 처리 시스템에서 수돗물을 역삼투(reverse osmosis)방식에 의해 처리해서 제조한 순수를 사용하였다.

#### 2.2.3 천연 가스 개질기

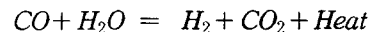
외부 개질기는 수증기 개질 반응(Steam Reforming)에 의하여 천연 가스를 H<sub>2</sub> 및 CO<sub>2</sub> 가스로 변환하는 장치로서 LNG 공급부, Steam 공급부, 연소기, 반응기, 기-액 분리기로 구성된다. 여기서 진행되는 주 반응은 개질 반응과 수성 가스 전이 반응이며, 개질 공정은 다음과 같이 진행된다.

- LNG → 탈황반응기 (300°C) → 열교환기 → (물) → 개질기 (600~800°C, 2기압) → CO 전환기 (250°C) → (syn-gas) → 스택

▶ 스팀 개질 반응 (3~5기압, 700~900°C, Ni계 촉매)



▶ 수성 가스 전이 반응 (3~5기압, 180~250°C, Cu계 촉매)



#### 2.2.4 수처리 장치

스택에 공급되는 순수를 만들어 내는 수처리 장치는 고농도의 용액에 압력을 가하여 반투막을

통하여 저농도로 흐름을 주어 생산수의 용존 이온량을 감소시키는 역삼투압(reverse osmosis)을 이용하여 고순도의 순수를 만들어 내는 시스템으로 공급된 물은 다음과 같이 6가지 단계를 거쳐서 순수로 만들어진다.

●수돗물 → 5 Micron Cartridge Filter → A/C Cartridge Filter → R/O Pre-filter → Reverse Osmosis System → 1 Micron Resin Trap Filter

### 2.2.5 부하 장치

각 전지를 직렬로 연결한 회로에 부하를 걸어 주는 장치는 정전류 제어방식을 사용하며 최대 전압은 48V이고 최대 전류는 1,200A이며, 전체 용량은 33.6 kW까지 가능하다. 부하는 30분에 1200A의 속도로 증가시킬 수 있으며 15V를 UV(under voltage)로 하여 그 이하의 값이 되면 부하가 차단되어 가스가 흐르지 않는 경우나 전지가 성능이 약화될 때 전지를 보호할 수 있도록 구성되어 있다.

### 2.2.6 스택 지지 장치

연료전지 스택은 전기적으로 절연되어야 하므로 스택에 반응 가스를 공급하는 배관의 플랜지 부에는 절연 가스켓을 사용하였고 스택 설치대 하부에는 반응 가스 공급 및 배출부 스택 온도 측정용 열전대(thermocouple), 전압 단자, 전류 단자용 배관 그리고 스택 가열용 전기 히터의 전력선과 열전대의 입력 신호를 변환시켜 주는 컨버터 단자들을 설치하였다. 스택 커버 내부에는 차압조절을 위해 질소 가스를 계속 공급하며 일정 압력 유지를 위한 압력 조절 밸브와 과압 발생시를 대비해 안전 밸브들을 설치하였다. 스택은 하부 히터가 설치된 열판 위에 절연판을 놓고 그 위에 설치하였다. 설치된 스택 위에는 역시 절연판이 위치하고 그 위에 상부 히터와 단열재가 위치한다. 스택내 단위전지 온도 측정을 위하여 상·하관 측정대를 포함하여 5곳에 (총 70개)의 온도를 측정할 수 있도록 하였으며 단위전지의 전압은 단위 전지당 1개(총 40개)의 센서를 설치하여 스택 성능을 측정하도록 구성하였다. 스택 내로 공급되는 연료극 가스와 공기극 가스의 차압 감시를 위하여 배관에 차압계를 설치하여 제어실에서 차압을 확인할 수 있도록 하였다. 차압을 감시할 수 있는 곳은 연료극과 스택, 공

기극과 스택, 연료극과 공기극으로서 연료 가스의 압력손실과 공기극 가스의 압력 손실을 감시할 수 있도록 하였다.

### 2.2.7 냉각 및 가스 재순환 장치

연료극 배기 가스에는 미반응 수소, 일산화탄소 및 이산화탄소 그리고 반응 생성물인 물이 고온의 상태로 존재한다. 연료극 및 산소극 배가스의 온도를 냉각수에 의하여 냉각하는 열 교환기를 설치하여 입구 온도 750°C의 배가스를 출구 온도가 45°C이하로 냉각하도록 하였다. 냉각기 내에서 응축된 물은 기수 분리기를 통하여 분리한 후 가스만 안전하게 외부로 배출한다. 분리된 연료극 배가스는 flare stack으로 보내어져서 미 연소된 수소가 완전 연소된 후 외부로 배출되며 공기극 배가스는 대기 중으로 방출되거나 가스 재순환 펌프를 통해 공기극 전단계에 있는 촉매연소기로 공급된다. 촉매 연소기는 열효율 향상 및 CO<sub>2</sub> 측정 목적으로 주로 사용된다.

### 2.2.8 가스 저장 설비

개질 가스는 냉각기에서 냉각된 후 개질 가스의 압력 조절 후 스택 내로 공급된다. 개질에 필요한 열은 천연가스를 연소하여 얻게된다. 수소 가스의 최대 공급량은 1,500 l/min(수소 이용률 20%)이고 최소 공급량은 300 l/min이다. 탄산 가스의 최대 공급량은 250 l/min이며 최소량은 85 l/min이다. 탄산가스는 용량 20톤의 액화탄산 가스 탱크를 설치하여 사용 중 연속 충진을 할 수 있는 설비로 구성하였다. 압력조절기를 병렬로 설치하여 공급 압력을 조절하고 기화기를 부착하여 결빙에 대비하였다.

이외에 이들을 상호 연결시키고 운전을 제어할 수 있는 제어 및 계측 설비 그리고 가스 및 전기 등과 같은 유틸리티 공급 설비가 구성되어 있다. 시험 설비에 사용되는 전기 기기나 부품은 spark 가 발생하는 것을 대비하여 내압 방폭 구조를 사용하였고 방폭 구조에서 밸브, 압력계 등은 안전 방폭 구조를 위해 내압 방폭 구조로 설정되어 있다.

### 2.3 MCFC 스택의 구성

연료 전지의 스택은 여러 개의 단위전지들로 이루어진다. 스택은 전지의 특성 및 발전 시스

템으로서 요구되는 출력에 의하여 영향을 받게 된다. 즉 전지의 특성은 구성되는 단위전지 구성 요소의 접촉, 온도 분포, 가스 밀봉, 압력 손실, 전기 절연 등을 고려하여야 하며 시스템 면에서는 필요로 하는 전류 및 전압 등과 단위전지의 적층 수 및 면적 등이 영향을 받게 된다.

25 kW MCFC 스택은 6000 cm<sup>2</sup> 면적(55×110 cm)의 전지 40장을 수직으로 적층한 것으로서, 시스템 효율 향상과 스택 대형화에 따른 냉각을 위하여 가압 및 공기극 가스 재순환 방식을 사용하고 있다. 스택이 설치된 모습은 그림 2와 같다. 이 그림은 가압 운전을 위해 스택 외부에 용기를 덮어서 밀폐시킨 상태이다.

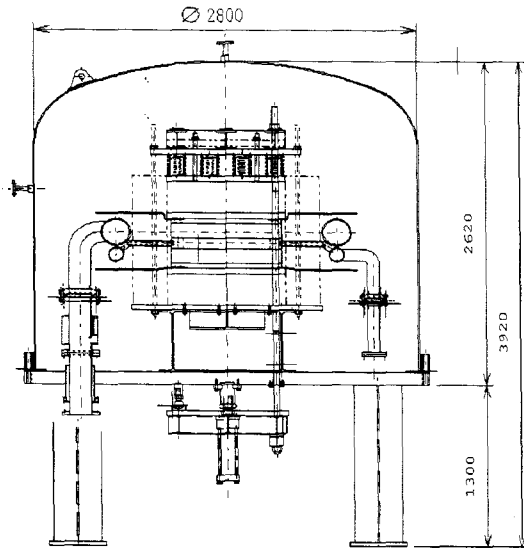
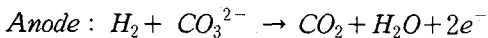
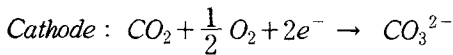


그림 2. 25 kW MCFC 스택의 설치 모습

부하를 걸어 주었을 때에 각 전지의 양극과 음극에서는 다음과 같은 반응들이 진행된다.



### 3. 25 kW MCFC 스택 시험 결과

#### 3.1 스택 초기 운전 특성

초기 상압 상태에서 전류 밀도 150 mA/cm<sup>2</sup>의 부

하에 연료 및 산소 이용률이 0.6이 되도록 반응 가스의 공급 유속을 일정하게 유지하였을 경우 스택의 전류-전압 관계를 그림 3에 나타내었다. MCFC 스택에서는 anode와 cathode 사이의 다공성 지지체에 전해질을 함침시켜 수소와 산소의 접촉을 차단하고 전지 가장자리에서는 wet seal로서의 기능을 수행하게 한다. MCFC anode와 cathode 사이의 압력차(차압)는 약 200 mm H<sub>2</sub>O 이하로 차압을 유지하도록 하고 있다. 25 kW MCFC 스택은 상압에서 이러한 차압 범위 내에서 운전하기 위하여 anode 및 cathode의 유량을 제한하게 된다. 25 kW 스택에서는 실용 스택으로서 검증 외에도 이러한 이유로 anode 및 cathode 가스 유량을 150 mA/cm<sup>2</sup> 조건에서 이용을 각각 60%에 해당하는 유량으로 결정하였다.

승온을 시작하여 790 시간 경과 한 후 측정된 개회로 전압(open circuit voltage)은 42.17 V 이었으며, 150 mA/cm<sup>2</sup> 에서 전압은 31.28 V로 28.15 kW의 출력을 보여주었다. 스택에서 단위전지 평균 개회로 전압은 평균 1.057 V/cell 이었는데, 이는 이론치에 비해 약간 낮은 것으로서 그 이유는 전지 면적 증대에 따라 내부 온도 분포가 균일하지 않기 때문인 것으로 생각된다.

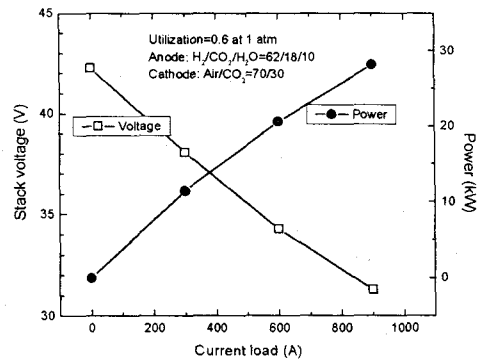


그림 3. 초기 전류-전압 특성 (1 기압)

#### 3.2 상압 및 가압 운전시 전지 성능 변화

그림 4(a)는 900 A의 부하(150 mA/cm<sup>2</sup>에 해당)에서 단위전지 1번(왼쪽)부터 40번 까지의 각 단위전지들 전압 분포를 나타내고 있다. 150 mA/cm<sup>2</sup> 정격 부하 상태에서 단위전지 성능 분포에 대한 표준 편차는 20.35 mV인데 이는 이전의 작은 스택 데이터와 비교하면 약간 큰 값이다.

가압하의 운전은 전극에서의 전기 화학 반응의 속도론적 특성을 향상시키는 효과를 얻을 뿐 아니라 평형 상태에서의 열역학적 특성인 기전력을 향상시키는 효과도 동반한다. 이러한 전지 성능 향상 효과외에 위에서 언급한 바와 같이 발전에 따른 스택의 온도 상승을 효과적으로 억제할 수 있는 방안을 제공한다. 즉 압력의 상승은 스택의 가스 입출구 방향의 압력 강하를 감소시켜 anode와 cathode간의 차압을 감소시키고, cathode에 더 많은 공기의 흐름을 허용하게 하여 스택에 냉각 효과를 얻게한다. 또한 가압 운전은 시스템의 크기를 감소시킬 수 있어 공간 효율성 측면에서도 유리하다고 할 수 있다.

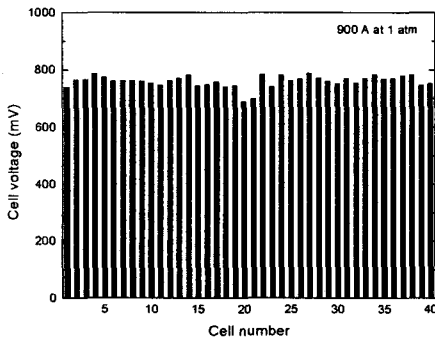


그림 4(a). 25 kW급 MCFC 상압 운전시 스택 내 단위전지 전압 분포 (900A)

그림 4(b)는 단위전지 1번(왼쪽)부터 40번까지의 각 단위전지들의 3기압에서 성능 및 전압 분포를 나타내고 있다. 개회로 전압은 단위전지에서 이론값보다 10-15 mV 정도 낮은 값을 보여주었으며 부하 증가에 따라 표준 편차가 크게 나타나고 있음을 알 수 있다. 150 mA/cm<sup>2</sup>의 전류 밀도에서 단위전지 성능 분포에 대한 표준 편차는 38.6 mV였으며 이는 주로 상부 cell의 성능 저하에 기인하고 있다. 많은 전지들이 상압에서보다 가압에서 약간 증가된 성능을 보여주고 있음을 확인할 수 있는 반면에, 몇개의 전지들은 가압시에 성능이 현저히 감소하여 전체 평균 성능은 가압에서 오히려 낮아지는 결과가 얻어졌다. 이는 승압 과정에서 발생하는 압력 변화로 인해 몇 개의 전지에서 가스 밀봉이 약화되어 가스 crossover 현상이 발생한 것으로 분석된다. 이를

종합하면 본 장치에서 대면적 스택의 가압 운전 효과는 얻을 수 있었으나 전지 구성 요소들의 특성이 가압 운전에 맞게 최적화 되지 않는 듯하다.

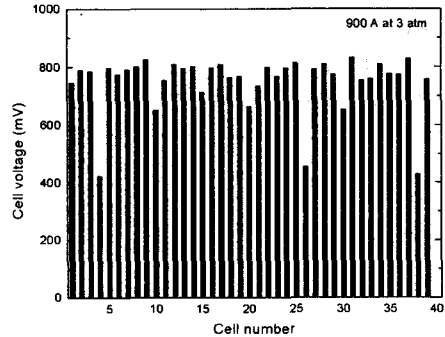


그림 4(b). 25 kW급 MCFC 가압 운전시 스택 내 단위전지 전압 분포 (900A)

### 3.3 스택 대형화에 따른 성능 변화

표 1은 지금까지 본 연구실에서 실험에 사용한 스택들의 전지 면적의 크기에 따른 성능 변화를 요약한 것이다. 정격 부하(150mA/cm<sup>2</sup>)에서의 전압은 면적의 증가에도 불구하고 성능은 크게 변화하지 않고 있으며 오히려 3,000cm<sup>2</sup>급 단위전지를 20매 사용한 7 kW급 스택이 가장 좋은 성능을 보여주고 있다. 이는 단위전지 면적 증가에도 불구하고 구성 요소 제조 공정 및 신뢰성이 어느 정도까지는 향상되었음을 보여주고 있으나 면적이 실용 규모인 6,000 cm<sup>2</sup>를 넘어서면서 전지내 온도 분포의 변화로 전류 밀도 변화가 일정하게 되지 않아 성능이 감소한다. 한편 단위전지 면적의 증가에 따라 내부 저항의 증가와도 관련이 있을 것이다. 전극 분극 손실은 전극 반응이 느리거나 반응물의 이동 속도가 느리기 때문에 나타나게 되는데 단위전지 면적이 증가함에 따라 증가되는 경향을 보여준다. 이는 반응 분극이 주로 반응물 분압과 온도에 의존하게 되기 때문에 단위전지 면적 증가에 따라 분배의 불균일로 인하여 가스 유동 및 온도 분포의 변화가 전극에 영향을 미치고 있는 것으로 추정된다.

표 1. 면적에 따른 성능 변화

전극 면적	100 cm <sup>2</sup>	1000 cm <sup>2</sup>	3000 cm <sup>2</sup>	6000 cm <sup>2</sup>	6000 cm <sup>2</sup>
전지수	20	20	20	5	40
전압 (150mA/cm <sup>2</sup> )	846 mV	826 mV	852 mV	799 mV	782 mV
OCV	1073 mV	1081 mV	1096 mV	1052 mV	1057 mV
출력 전압	254 W	2.5 kW	7.6 kW	3.6 kW	28 kW

#### 4. 가압 스택에 대한 전산 모사

그림 5-7은 MCFC 스택 모델<sup>(1)</sup>에 대한 전산 모사로부터 가압 운전 특성을 파악해본 것이다. 그림 5는 압력에 따른 전지 성능 변화를, 그림 6은 압력의 변화에 따른 스택 내부 최고 온도의 변화를, 그리고 그림 7은 압력의 변화에 따른 기체 유동 압력 변화를 보여준다. 전지 성능은 이미 잘 알려져 있듯이 압력이 증가함에 따라 약간 증가한다. 그림 5에서 보듯이 성능 증가는 개회로 전압(OCV) 증가 보다 약간 더 크다. 이미 알려진 대로 가압 시의 성능 증가가 기체 분압 증가에 의한 OCV 상승 효과 뿐만 아니라 과전압의 감소에 의한 효과를 포함하기 때문이다. 그림 6에서 보듯이 내부 온도 상승은 압력 보다 이용률에 더 큰 영향을 받는다. 그림 7에서 보듯이 압력 증가에 따른 유동 압력의 감소는 매우 뚜렷한데, 특히 두드러진 효과는 1 - 5 기압 범위에서 나타난다. 이는 입출구의 유동 압력 차이(dynamic pressure drop)가 전체 압력에 반비례하기 때문이다.

#### 5. 결론

상용화 기술 확립의 목표로 제작 시험한 25 kW MCFC 스택 시스템은 발전 플랜트로서 필요한 다양한 주변 기기들과 장기간의 개발 끝에 얻어진 스택 요소들로 구성되어 있다. 상압 운전에서 스택 성능은 만족스러운 것이었으며, 가압 운전의 효과도 충분히 보여주었다.

#### 참고문헌

- (1) 고준호, 유영성, 임희천, "용융탄산염 연료전지 스택 운전시의 온도 상승 및 냉각 효과 해석," 대한기계학회 추계학술대회 논문집 B, pp 37-42, 1999.

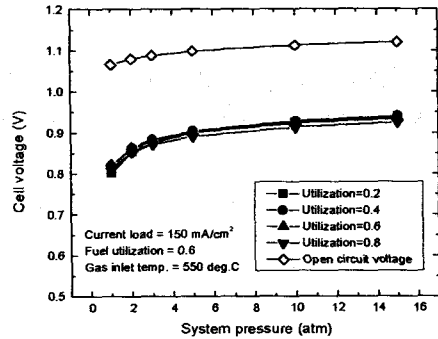


그림 5. 압력에 따른 스택 전지 성능 변화

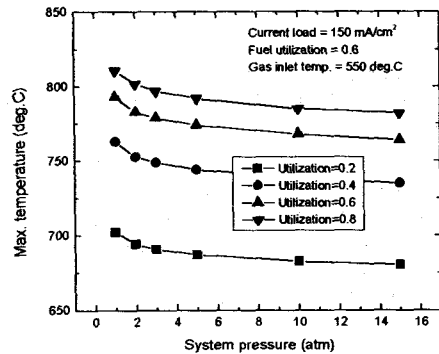


그림 6. 압력에 따른 스택 내부 최고 온도 변화

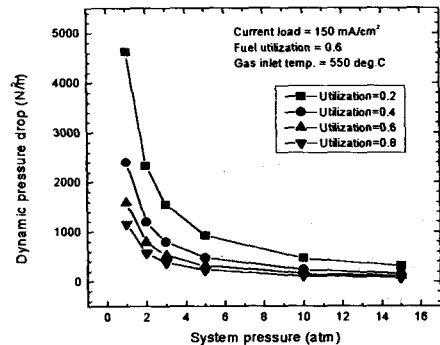


그림 7. 압력에 따른 기체 유동 압력 변화