

고체산화물연료전지 발전시스템

이 태 희*, 최 진 혁*, 박 태 성**, 유 영 성***

(한전 전력연구원 전략기술연구소 *일반연구원, **선임연구원, ***책임연구원)

고체산화물 연료전지(Solid Oxide Fuel Cell, SOFC)는 고체상의 세라믹 전해질과 전극으로 구성되어 고온에서 운전되며, 다양한 연료의 사용이 용이하고 높은 발전효율과 환경친화적인 특성으로 인해 차세대 발전시스템으로 주목받고 있다. SOFC 발전시스템은 규모, 사용연료, 용도 등에 따라 다양하게 구성할 수 있지만 크게 연료개질장치, SOFC 스택, 전력변환장치, 열관리 장치로 구성된다. SOFC 시스템의 효율을 향상시키기 위해서 연료극 및 공기극 재순환, 공기예열, 열관리 방안 등의 다양한 방법들이 이용되고 있다. 한편 한전 전력연구원에서는 연료극 지지체형 SOFC 단전지 개발을 통해 국내 최초로 1kWe급 시스템을 제작하여 도시가스를 연료로 하여 1.3kWe의 최대 출력을 얻었으며, 온수제조를 통해 0.57~1.2kW의 열량을 회수할 수 있었다. 현재는 효율과 내구성 향상을 위해 새로운 스택과 시스템 개발을 진행 중에 있다.

1. 서론

연료전지는 전기화학반응을 통해 연료의 화학에너지를 전기에너지로 직접 전환하는 에너지 변환장치로서, 기존 발전장치들과 비교해 발전효율이 매우 높다. 또한 크기나 형태, 용량에 대한 자유도가 높아 전력수요에 맞는 다양한 용량의 시스템 구성이 가능하므로 휴대용 전자기기의 초소형 전원으

로부터 대형 발전시스템까지 다양한 응용범위를 가지고 있다⁽¹⁾. 한편, 연료전지는 NO_x, SO_x와 같은 오염물질의 배출량이 적고, 수소를 연료로 사용할 경우 물 이외의 오염물질을 배출하지 않는 환경 친화적인 발전 시스템으로 에너지와 환경문제를 동시에 해결해 줄 수 있는 차세대 발전방식으로 주목받고 있다.

연료전지는 전해질 종류 및 특성에 따라 작동온도, 구성요소, 시스템의 형태가 결정된다. 이 가운데 SOFC는 고체상의 세라믹을 전해질로 사용하여 고온(500~1000℃)에서 운전이 이루어져 다른 연료전지들에 비해 발전효율이 높고, 비싼 비귀금속계의 촉매가 필요 없다. 수소의 사회 인프라가 미비한 현 시점에서 SOFC는 LPG, LNG 등의 다양한 탄화수소계 연료를 고가의 외부 개질장치 없이도 직접 연료로 사용할 수 있어 기존 화석연료 인프라에서도 시스템을 구성할 수 있는 차세대 청정 발전시스템이다. 또한 열병합 발전 및 복합발전에 유리하여 수 kW급 가정용 발전장치(Residential Power Generation, RPG)를 비롯하여 분산전원(수백 kW~수 MW) 및 대형발전 시스템(수백 MW)에 적합한 것으로 알려져 있다.^(2,3)

본 논문에서는 SOFC 시스템의 구성요소와 효율향상을 위한 시스템 설계방향 등에 대해 살펴보고, 현재 한전 전력연구원에서 수행하고 있는 SOFC 개발 현황에 대해 소개하고자 한다.

2. SOFC 시스템 구성요소

연료전지 시스템은 용도, 규모, 사용하는 연료 및 개질방식에 따라 다양하게 구성할 수 있으며, 이에 따라 시스템 특징 및 제어전략도 달라진다. 그림 1은 연료전지 시스템의 개략도를 보여주고 있는데, 전체 시스템은 연료공급 및 개질장치(Fuel Processor Subsystem), 연료전지 발전모듈(Fuel Cell Subsystem), 전력변환장치(Power Conditioner Subsystem), 열관리 장치(Thermal Management Subsystem) 등으로 구성된다.^[4]

2.1 연료개질장치

연료개질장치는 탄화수소계 연료(LNG, LPG, 디젤 등)를 화학적 변환과정을 통해 수소가 다량 포함된 가스로 전환시켜 연료전지에 공급하는 역할을 한다. 따라서 탈황기, 촉매반응기, 열교환 장치, 반응물 공급장치 등으로 이루어진다. SOFC와 같은 고온형 연료전지의 경우 개질반응에서 나오는 일산화탄소도 연료로 사용되며, 연료전지 스택에서 발생하는 열을 이용하는 내부개질반응도 가능하기 때문에 저온형 연료전지에 비해 매우 간단하게 연료개질장치를 구성할 수 있는 장점이 있다. 기체연료와 공기의 경우 유량 및 압력에 따라 송풍기(blower) 또는 압축기(compressor)로 공급이 이루어지며, 액체연료와 물은 펌프 및 기화기 등을 통해 적절한 방법으로 무화 또는 기화되어 개질반응에 참가하게 된다. 내부개질방식을 사용할 경우 별도의 개질기를 구성할 필요가 없으며 스택에서 발생하는 열을 이용하기 때문에 시스템 효율 측면과 스택 냉각에 유리하다. 하지만 사용되는 연료에 따라 스택내부에서 탄소침적이 생기는 문제가 발생되므로, pre-reformer 또는 외부개질 방식이 불가피한 경우도 있다.

2.2 SOFC 스택

SOFC 스택(발전모듈)은 개질기에서 공급되는 연료를 전

기화학적 산화반응을 통해 DC 전력으로 변환해 주는 역할을 한다. 연료전지는 연료극, 전해질, 공기극 등으로 이루어진 단전지(single cell)를 기본적인 구성요소로 한다. SOFC 단전지는 다공성 복합체의 전극 사이에 치밀한 구조의 전해질 세라믹층을 형성시켜 구성하는데 매우 까다로운 세라믹 공정 기술이 요구된다. 연료전지에서 원하는 전압과 출력을 얻기 위해서는 여러 장의 단전지를 연결하여 하나의 발전모듈로 만든 스택(stack)을 구성해야 한다. SOFC 스택은 그림 2에서 보는 것처럼 단전지, 단전지들을 전기적으로 연결하고 연료극과 공기극에 각각 가스유로를 제공해 주는 분리판, 그리고 단전지와 분리판을 연결하는 밀봉재로 이루어져 있다. SOFC는 외형에 따라 원통형과 평판형, 평판형 등이 있으며, 지지체의 선택과 구성에 따라 전해질지지형, 연료극 및 공기극지지형, 금속지지형이 있다. 스택의 구조와 형태는 구성물질의 특성에 의해 달라질 수 있는데, 작동조건에서 단전지 및 스택 구성요소들의 물리적, 전기적, 전기화학적 특성과 안정성을 반드시 고려해야 한다. 그리고 사용되는 재료와 응용분야에 따라 800~1000℃ 부근에서 작동하는 고온형, 650~800℃에서 작동하는 중온형, 그리고 650℃ 이하에서 작동하는 저온형으로 나눌 수 있다.

2.3 열관리장치

열관리 장치는 고온에서 운전되는 SOFC 시스템에서 발생하는 열을 시스템 내부에 필요로 하는 곳으로 공급하고, 온수 제조 및 난방에 활용하기 위한 열교환 및 열회수 장치를 포함한다. SOFC 시스템에서 열이 발생하는 곳은 SOFC 스택, 스택 미반응 가스의 촉매연소기, 자율개질기(Autothermal Reformer) 등이 있다. 반대로 열이 필요한 곳은 수증기 개질반응기(Steam Reformer), 스팀 제너레이터, 예열기, 온수제조장치 등이 있다. 따라서 시스템에서 발생하는 열량과 필요한 열량을 계산하여 열교환망을 적절히 설계하고, 열손실을 최소화 하는 것은 SOFC 시스템의 효율에 매우 큰 영향을 주

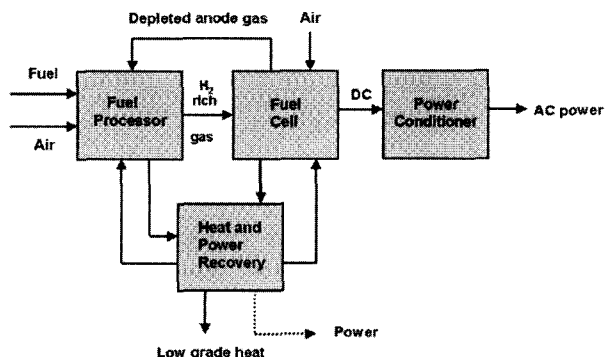


그림 1 연료전지 시스템 개략도^[5]

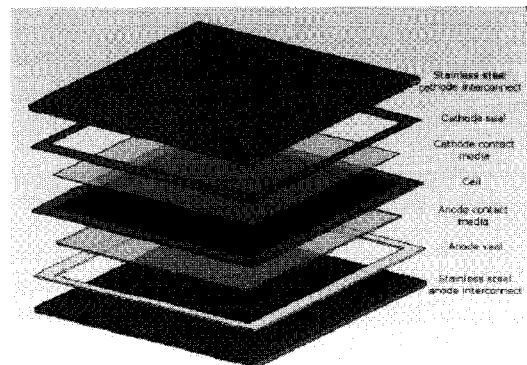


그림 2 평판형 SOFC 스택 구조(VPS 스택)

게 된다.

2.4 전력변환장치

전력변환기는 고전류-저전압의 특징을 가지는 연료전지의 직류전원을 상용전원인 교류전원으로 변환하여 계통에 안정된 전력을 공급하는 기능을 한다. 이러한 전력변환기는 DC-DC 컨버터와 DC-AC 인버터로 구성된다. DC-DC 컨버터는 인가된 전류에 따라 가변적인 스택전압을 DC-AC 인버터가 요구하는 전압으로 승압하는 역할을 하며, DC-AC 인버터는 승압된 직류전원을 적절한 주파수와 상을 갖는 교류전원으로 변환하고 계통에 연계하여 계통으로 안정된 전력을 공급하는 역할을 한다.

3. 효율향상을 위한 SOFC 시스템 설계방안

SOFC 시스템의 효율을 높이고 안정성을 확보하기 위해 단위 구성장치들의 성능향상과 함께 시스템 설계, 종합, 운전 및 제어에 대한 효과적인 전략 수립이 필요하다. 지금까지 다양한 SOFC 시스템 디자인이 제안되었으며, 시스템 효율향상을 위해 열관리(Thermal management), 공기극 및 연료극 순환(Anode Recycle)을 비롯하여 내부개질 등의 설계안이 제시되고 있다.

3.1 연료극 재순환

연료극 재순환(Anode Gas Recycle, AGR) 시스템은 연료극에서 나온 미반응 가스를 다시 연료극 입구 쪽으로 순환시켜 효율을 향상시키기 위해 사용되며, 연료극 가스에 물을 공급하여 개질반응을 돕고, 탄소 침적을 방지해 준다. 또한 이를 통해 물을 기화시키는데 필요한 열의 손실도 줄일 수 있는 장점이 있다. AGR은 다음과 같이 정의할 수 있다.

$$AGR = \frac{\dot{n}_{\text{recycle}}}{\dot{n}_{\text{anode, outlet}}}$$

열역학적으로 탄소 침적을 막기 위해서는 steam/carbon 비율을 2~3이 되도록 과량의 수증기를 공급해야 하지만, 그 양이 증가할 경우 수소 수율이 낮아지고 수증기를 만들거나 공기극 배기가스를 재순환 시키는데 많은 에너지가 소모되므로 steam/carbon 비율은 2 정도가 적당한 것으로 알려져 있다.^[6] AGR을 위해서는 고온 송풍기(또는 이젝터)가 추가로 필요하며, 이를 구동시키는데 필요한 동력이 필요하다.

3.2 공기극 재순환

공기극 재순환(Cathode Gas Recycle, CGR) 시스템은 공

기극 배기가스를 다시 순환시킴으로써 공기 예열기와 송풍기(blower) 용량을 줄일 수 있을 뿐만 아니라, 예열기와 송풍기에서 소모되는 에너지를 절감할 수 있게 한다. CGR 양은 다음과 같이 정의할 수 있다.

$$CGR = \frac{\dot{n}_{\text{recycle}}}{\dot{n}_{\text{cathode, outlet}}}$$

AGR과 마찬가지로 고온 송풍기가 있어야 하고, 이를 구동시키는데 필요한 동력이 소모된다. 또한 CGR 양의 증가에 따른 산소분압의 저하로 스택 효율이 낮아질 수 있으므로, 실제 시스템에서는 적절한 CGR 운전조건을 찾는 것이 중요하다.

3.3 공기예열장치

SOFC 스택의 미세한 유로는 스택 내의 반응물과 고체 표면의 효과적인 열과 물질전달을 제공하며, 스택내의 고체와 가스의 온도차는 미비한 것으로 알려져 있다. 따라서 연료와 공기가 원하는 스택 작동온도와 비슷한 온도로 예열되는 것이 중요하다. 공기를 예열하는 것은 연료를 예열하는 것보다는 훨씬 수월하다. 연료를 예열할 경우 흡열화학반응이 일어날 수 있고, 가열 속도에 민감한 탄소침적이 일어날 수도 있기 때문이다. 반면 공기는 물 이외에는 온도에 따른 조성의 변화가 없고, SOFC 시스템에서 요구하는 온도범위에서 비열이 크게 변하지 않으며 가열속도에 대한 제한도 없다.

공기 예열의 가장 중요한 문제는 요구되는 높은 예열 열량과 열교환기 내에서 일어나는 차압, 그리고 예열기의 높은 작동온도로 인해 열교환기에 쓰이는 재료가 고가인 문제이다. 열교환기의 크기와 재료는 SOFC 스택의 작동온도에 따라 달

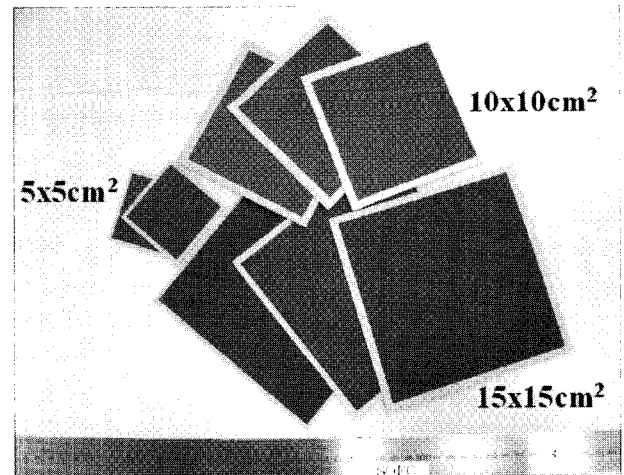


그림 3 연료극지지체형 SOFC 단전지

라진다. 공기 예열을 위해서는 스택의 배기가스에서 열교환을 통해 열을 회수해야 한다.

3.4 열관리

SOFC의 성능은 작동온도에 매우 민감하다. 온도가 증가함에 따라 반응의 기전력은 다소 감소하지만, 셀 저항의 감소가 훨씬 큰 효과로 작용한다. 이 효과는 매우 강해서 가능한 높은 온도에서 작동하는 것이 좋다. 그러나 온도가 증가함에 따라 스택의 성능저하의 속도 역시 매우 빠르게 증가하는데, 이는 분리판의 산화 및 셀과 상호 작용하는 것에 의해 주로 나타나게 되어 SOFC 작동온도를 제한하게 된다. 따라서 고온 내산화성 분리판 개발과 이를 위한 금속 및 코팅 재료 개발을 통해 SOFC의 작동온도를 높여 성능향상을 꾀하는 노력이 시도되고 있다.

한편, 스택내의 열과 물질전달의 균형을 맞춰줌으로써 스택내의 원하는 온도분포를 얻기 위하여 전체 시스템의 열관리가 요구된다. 스택과 시스템의 열관리는 시스템 성능, 내구성 및 비용 측면에서 매우 중요하다. 열관리의 가장 일반적인 방법은 시스템 내부의 열 부하에 적절한 속도로 열전달을 할 수 있는 열원을 연결시키는 것이다. 전통적인 시스템에서는 SOFC 모듈에서 발생하는 열을 과량으로 공급한 공기의 대류열전달을 통해 제거 하였다. SOFC의 효과적인 냉각을 위해서는 많은 양의 공기가 필요하고 이는 시스템에 있어 하나의 단점이 된다. 최근에는 내부개질과 Multi-stage Oxidation 등도 효과적인 열관리 방법으로 연구되고 있다.

4. 전력연구원의 SOFC 발전시스템 개발현황

4.1 SOFC 단전지 개발

한전 전력연구원(KEPRI)에서는 중·저온(650~800℃)에서 작동하는 평판형의 연료극지지식 단전지와 스택 개발에 중점을 두고 있다. 전력연구원에서는 국내 최초로 Ni-YSZ (yttria-stabilized zirconia) 연료극지지체와 YSZ 전해질, $(La_{0.8}Sr_{0.2})MnO_3$ 공기극을 이용하여 연료극지지형 단전지 개발에 성공하였다. 중·저온에서 보다 우수한 성능을 얻기 위하여 다공성의 연료극지지체 위에 상대적으로 치밀한 Ni-YSZ의 FL 층을 15 μ m 두께로 삽입하였으며, $(La_{0.6}Sr_{0.4})(Co_{0.2}Fe_{0.8})O_3$ 공기극을 이용하였다. 그 결과 650℃에서 0.36 W/cm², 750℃에서 1.2 W/cm²의 최대출력밀도를 얻을 수 있었다. 한편, 중·저온에서 고성능을 얻기 위해 YSZ 보다 높은 산소이온 전도성을 가진 물질로 알려진 ScSZ(scandia-stabilized zirconia) 전해질을 이용한 단전지를 제조하여 650℃에서 0.55 W/cm², 750℃에서 1.7 W/cm²의 우수한 최대 출력밀도를 얻을 수 있었다.^[7] 그리고 발전용량 증가를 위해 단전지의 대면적화 연구를 수행하여, 그림 3에서 보는 것처럼

10×10cm²와 15×15cm²의 대면적 단전지 제작 공정을 확보하였다.

4.2 SOFC 스택 개발

중·저온에서 작동하는 SOFC는 저렴한 금속재질의 분리판을 사용할 수 있다. 특히 ferritic alloy인 STS430의 경우 가격도 저렴할 뿐만 아니라 다른 구성요소와 열팽창계수도 유사하다. 전력연구원에서는 STS430을 이용하여 분리판을 제작하였다. 하지만 공기극의 산화분위기에서는 ferritic 계의 분리판 표면에서 산화층을 형성시킬 뿐만 아니라 CrO₂(OH)₂와 같은 물질이 공기극에 Cr 피독을 피독시켜 SOFC 스택의 성능 저하를 야기 시키는 것으로 알려져 있다. 이러한 문제점 때문에 공기극의 분리판과 집전망에는 LSM과 silver paste를 코팅하여 스택을 구성하였다.

전력연구원은 10cm×10cm 크기의 셀(YSZ 전해질 사용) 37장과 STS430 분리판 및 유리계의 밀봉 가스켓을 이용하여 국내최초로 1kW급 스택을 제작하였다. 1kWe급 스택은 45A 운전 조건에서 1.22kWe DC의 출력을 나타내었으며, 스택의 전력변환효율은 약 42%였다.^[7] 최근에는 SOFC 스택의 효율을 향상시키기 위해 스택 디자인을 새롭게 하였다. 스택의 셀 수를 증가시켜 낮은 전류 영역에서 운전함으로써 스택 효율을 높이고, 스택 전체의 전압을 향상시켜 전력변환기의 효율역시 향상시킬 수 있도록 설계하였다. 이를 위해 스택의 층간 거리를 8.5 mm,에서 6.5 mm로 줄인 컴팩트형 신형 스택을 개발하여 50장의 셀을 적층한 1kW급 스택을 제작하였다.

4.3 SOFC 시스템 개발

전력연구원은 산업자원부 지원으로 2003년~2006년까지 진행된 연구에서 1kW급 중온형 SOFC 스택과 천연가스 연료개질기 등 BOP 개발을 통해 1kW급 SOFC 시스템을 설계·제작하고 성공적으로 운전하였다. 개발된 SOFC 시스템은 천연가스를 연료로 750℃에서 운전되어 40A에서 1.13kWe, 50A에서는 1.3kWe의 출력을 보였다. 그리고 스택 미반응 가스의 연소열을 이용한 온수제조를 통해 전류에

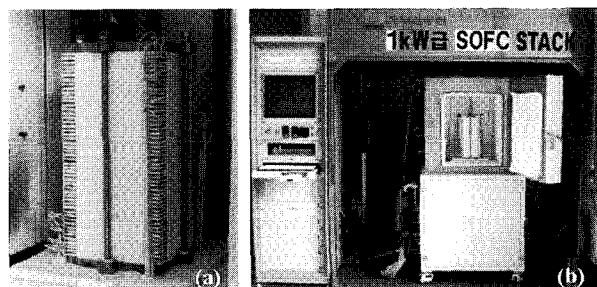


그림 4 (a)1kWe급 50셀 스택 (b)1kWe급 SOFC 시스템


따라 0.57~1.2kW의 열량을 회수할 수 있었다.^[7]

최근에는 기존의 SOFC 시스템을 개선하여 새로운 1kWe 급 LPG(LNG)용 발전시스템을 제작하여 성능시험 중에 있다. 기존의 자열개질기 대신 내부개질 방식을 채택하였으며, 연료가 LPG인 점을 감안하여 pre-reforming 장치를 추가하였다. Hot box 내부에는 스택과 pre-reformer가 설치되고, 연료극 미반응 가스는 스택 하단에 있는 촉매연소에서 연소가 이루어져 개질에 필요한 수증기를 생성하고 hot box 내부의 온도를 조절하게 된다. 한편 공기극 출구 가스는 스택룸 내부로 배출되어 순환된 다음 촉매연소에서 미반응 가스의 연소에 이용된 후, 온수제조를 통한 열회수를 하게 된다. 한편 공급된 공기와 연료역시 연소가스와의 열교환을 통해 예열되어 스택과 pre-reformer로 공급된다.

또한 탄화수소 연료 가운데 수소에 대한 Volumetric density와 Gravimetric density가 가장 우수한 연료로 알려진 디젤을 사용하는 1kWe급 시스템 개발도 진행되고 있다. 디젤용 시스템의 경우 탄소침적 우려로 인해 외부개질방식을 채택하였으며, 시스템의 열관리를 위해 고온에서 작동되는 SOFC 스택, 열교환기, 연료 개질기 및 버너 등을 hot box 내부에 넣도록 설계하였다.

현재는 2010년까지 5kWe급 SOFC 열병합 발전시스템 개발과제가 진행 중이다. 도시가스 이외에 등유와 디젤 등의 액체연료도 사용할 수 있는 개질 시스템을 개발하고, 발전효율 35%, 열회수를 포함한 시스템 전체효율 75%를 목표로 하고 있다.

5. 결론

본 논문에서는 SOFC 시스템의 구성요소와 효율향상을 위한 설계방향 및 현재 전력연구원에서 수행하고 있는 SOFC 개발현황에 대해 소개하였다. 전력연구원에서는 친환경, 고효율 발전 방식으로 주목받고 있는 SOFC 열병합 발전시스템 개발을 위해 고성능 SOFC 단전지와 스택연구를 비롯하여, 전력변환기, 펌프, 블로워 등의 BOP 개발과 최적화에 대한 연구를 수행하고 있다. 또한 내구성과 경제성을 확보를 통해 SOFC 시스템의 상용화를 위해 노력하고 있다. 

참고 문헌

[1] James Larminie and Andrew Dicks, "Fuel Cell Systems Explained" 2nd Edition, John Wiley & Sons, UK, pp.3-24, 2003.
 [2] B.C.H.Steel and A.Heinzel, "Materials for Fuel Cell Technology", Nature, 414[15], pp.345-352, 2001.

[3] O.Yamamoto, "Solid Oxide Fuel Cells : Fundamental Aspects and Prospects", Electrochemical Acta, 45, pp.2423-2435, 2000.
 [4] Ryan O'Hayre, Suk-Won Cha, Whitney Colella and Fritz B.Prinz, "FUEL CELL FUNDAMENTALS", John Wiley & Sons, New York, pp.279-321, 2006.
 [5] P.F.van den Oosterkamp, "Critical issues in heat transfer for fuel cell systems", Energy Conversion and Management, 47, pp.3552-3561, 2006.
 [6] R.J.Braun, "Optimal Design and Operation of Solid Oxide Fuel Cell Systems for small-scale Stationary Applications", Ph.D. Thesis, University of Wisconsin-Madison, 2002.
 [7] 유영성 외, "1kW급 중온형 고체산화물연료전지(SOFC) 모듈 및 시스템 개발 최종보고서", 산업자원부, 2006.

〈 저 자 소 개 〉



이태희(李太熙)

1978년 8월 12일생. 2003년 Postech 기계공학과 졸업. 2006년 KAIST 기계공학과 졸업(석사). 2006년~현재 전력연구원 일반연구원.



최진혁(崔鎮赫)

1973년 4월 7일생. 1998년 서울대 공업화학과 졸업. 2000년 동 대학원 졸업(석사). 2005년~현재 전력연구원 일반연구원.



박태성(朴泰成)

1963년 11월 17일생. 1987년 순천향대 화학과 졸업. 2002년 공주대 화학과 졸업(석사). 2000년~현재 전력연구원 선임연구원.



유영성(劉永成)

1962년 5월 13일생. 1985년 서울대 무기재료공학과 졸업. 1987년 동 대학원 졸업(석사). 1995년 동 대학원 졸업(공학). 2006년~현재 전력연구원 책임연구원.