

1kW 고체산화물 연료전지(SOFC) 시스템 설계 및 자열운전

이태희[†], 최진혁*, 박태성*, 유영성*, 남석우**

*한전 전력연구원 녹색성장연구소, **한국과학기술연구원

Design and Self-sustainable Operation of 1 kW SOFC System

TAEHEE LEE[†], JINHYEOK CHOI*, TAESUNG PARK*, YOUNGSUNG YOO*, SUKWOON NAM**

*Green Growth Technology Laboratory, Korea Electric Power Research Institute, 65 Munjiro, Yuseong-gu, Daejeon 305-760, Korea

**Center for Fuel Cell Research, Korea Institute of Science and Technology, 39-1 Hawolgok-dong, Seongbuk-gu, Seoul 136-791, Korea

ABSTRACT

KEPRI (Korea Electric Power Research Institute) has studied planar type solid oxide fuel cell (SOFC) stacks using anode-supported cells and kW class co-generation systems for residential power generation. In this work, a 1 kW SOFC system consisted of a hot box part, a cold BOP (balance of plant) part, and a hot water reservoir. The hot box part contained a SOFC stack made up of 48 cells, a fuel reformer, a catalytic combustor, and heat exchangers. Thermal management and insulation system were especially designed for self-sustainable operation in that system. A cold BOP part was composed of blowers, pumps, a water trap, and system control units. When the 1 kW SOFC stack was tested using hydrogen at 750°C, the stack power was about 1.2 kW_e at 30 A and 1.6 kW_e at 50 A. Turning off an electric furnace, the SOFC system was operated using hydrogen and city gas without any external heat source. Under self-sustainable operation conditions, the stack power was about 1.3 kW_e with hydrogen and 1.2 kW_e with city gas respectively. The system also recuperated heat of about 1.1 kW_{th} by making hot water.

KEY WORDS : Solid oxide fuel cell(고체산화물 연료전지), Self-sustainable operation(자열운전), Thermal management system(열교환망), Balance of plant(시스템 주변장치), Co-generation(열병합발전)

Nomenclature

P : power, W(J/s)

I : current, A

E : efficiency, %

U : utilization, %

F : faraday constant, C/mol

V : molar flow rate, mol/s

n : cell numbers in a stack

H : enthalpy, J/mol

Q' : heat flow rate, W

[†]Corresponding author : thlee@kepri.re.kr

[접수일 : 2009.7.21 수정일 : 2009.8.18 게재확정일 : 2009.10.23]

Subscripts

e : electrical
 th : thermal
 s : stack
 f : fuel
 L.H.V. : lower heating value

1. 서 론

연료전지는 연료의 전기화학적 산화반응을 통해 연료의 화학에너지를 전기에너지로 직접 전환시키는 에너지 변환장치로서, 전지와 달리 연료의 공급에 의해 연속적인 발전이 가능하며, 기존의 발전장치들과 비교할 때 이론적으로 높은 발전효율을 얻을 수 있다. 또한 모듈화가 용이하여 다양한 용량을 얻을 수 있으며, 수소를 연료로 사용할 경우 물 이외의 오염물질을 배출하지 않는 환경 친화적인 발전방식이다.

연료전지는 구성 소재에 따라 운전조건과 특성이 달라지는데, 특히 사용되는 전해질에 따라 알칼리형(AFC, alkaline fuel cell), 인산형(PAFC, phosphoric acid fuel cell), 고분자형(PEMFC, polymer electrolyte membrane fuel cell), 용융탄산염형(MCFC, molten carbonate fuel cell), 고체산화물형 연료전지(SOFC, solid oxide fuel cell) 등으로 나눌 수 있다^{1,2)}. 이 가운데 제 3세대 연료전지라 불리는 SOFC는 셀을 구성하는 기본 요소인 전해질 및 전극이 모두 세라믹으로 구성되어 있으며, 작동온도(500-1000°C)가 높아 발전효율이 높고 배기가스의 배열을 이용할 수 있는 장점이 있다. 특히 고온 작동으로 인해 수소뿐만 아니라 일산화탄소, 메탄, 가솔린, 디젤 등 다양한 연료의 사용이 가능하며, 비귀금속계의 전극을 이용하므로 SOFC를 이용한 발전시스템이 기존의 발전소와 지역난방 시스템을 대체할 수 있을 것으로 전망되고 있다^{3,4)}.

SOFC 발전시스템은 전기를 생산하는 연료전지 스택(모듈) 외에도 연료를 스택에서 사용할 수 있도록 수소가 다량 함유된 가스로 변환시키는 연료 개질기와 생산된 직류전기의 전압을 조절해 주고

교류전기로 변환시키는 전력변환장치, 반응물 공급을 위한 송풍기와 펌프, 열회수 시스템, 제어시스템 등의 시스템 주변장치(BOP, balance of plant) 등으로 구성되어 있다. 따라서 SOFC 발전시스템의 효율을 향상시키기 위해서는 스택을 비롯한 연료개질기, 전력변환기 등의 시스템 구성요소의 성능개선뿐만 아니라 단열 및 열관리 시스템 설계가 매우 중요하다.

SOFC 발전시스템에서 SOFC 스택, 스택 미반응 가스의 촉매연소기(catalytic combustor), 자열 개질기(autothermal reformer) 등은 열이 발생하는 곳이다. 반대로 열이 필요한 곳은 수증기개질기(steam reformer), 기화기, 공기 및 연료예열기, 온수제조장치 등이 있다. 따라서 시스템에서 발생하는 열량과 필요한 열량을 계산하여 열교환망을 적절히 설계하고, 열손실을 최소화 하는 것은 SOFC 시스템의 효율에 매우 큰 영향을 주게 된다.

현재 한전 전력연구원에서는 250kW급 MCFC 발전시스템 개발⁵⁾과 SOFC를 이용한 가정용(RPG, residential power generation) 및 상업용(CPG, commercial power generation) 열병합 발전시스템 개발이 진행되고 있다. 본 논문에서는 현재 한전 전력연구원에서 가정용으로 개발 중인 1kW급 SOFC 시스템의 운전 성능을 정리하였다. 특히 효율적인 열관리를 통해 외부의 열원 없이 SOFC 시스템 내부에서 생성되는 열만을 이용하여 자열운전이 가능하도록 시스템을 설계하고, 수소 및 도시가스를 이용한 SOFC 시스템의 자열운전 결과에 대해 분석하고자 한다.

2. SOFC 시스템 설계 및 구성

2.1 SOFC 스택

NiO와 8mol% YSZ(yttria-stabilized zirconia) 분말을 일축가압 방법으로 성형하고 1400°C에서 1 시간 동안 열처리를 하여 연료극 지지체를 제조하였다. 가소결된 지지체 위에 FL(functional layer)과 YSZ의 전해질을 슬러리 코팅방법으로 올린 후 소결하였다. 공기극 물질인 LSCF((La_{0.6}Sr_{0.4})(Co_{0.2}Fe_{0.8})O₃)

를 전해질이 코팅된 시편에 스크린 프린팅 한 후 열처리를 하여 최종적으로 셀을 제조하였다. 1kW급 스택은 10 × 10cm² 크기의 셀 48 장과 ferritic 계의 STS430 재질의 금속분리판 및 유리계의 고온 밀봉제를 이용하여 제작되었다.

2.2 시스템 제작 및 구성

Fig. 1은 1kW급 SOFC 시스템의 외형을 보여주고 있다. 시스템 상부에는 원통형의 고온박스(hot box)가 있고 내부에 SOFC 시스템 구성품 중에서 작동온도가 높은 스택, 연료개질기, 촉매연소기, 열교환기 등이 위치하고 있다. 스택의 온도를 650℃ - 750℃의 고온으로 유지하고 열손실을 최소화하여 시스템 효율을 확보하기 위하여 스택 주변에 단열벽을 제작하였으며, 스택 전처리 및 고온박스 내부 온도조절을 위해 전기로가 설치되었다.

저온 연료전지(PEMFC)는 개질 후 일산화탄소 농도를 낮추기 위해 추가적인 정제처리공정이 필요하지만, 고온 연료전지(SOFC, MCFC)의 경우 탄화수소계의 연료를 간단한 개질반응만을 수행하거나 천연가스(메탄) 같은 연료는 연료전지에 직접 공급되어 내부개질 반응을 통해 사용이 가능한 장점이 있다. 본 시스템에서는 고온 연료전지의 이러한 장점을 이용해 예비개질기(pre-reformer) 또는 수증

기개질기(steam reformer)를 장착하여 도시가스에 포함된 C₂ 이상의 탄화수소를 메탄 및 수소로 전환하여 SOFC 스택에 공급하였다. 본 연구에서는 상용촉매(Sud- chemie C11 - PR)를 반응기에 충전하여 예비개질기를 구성하였다.

고온박스 아래에 위치한 저온의 시스템 주변장치(cold BOPs) 부분에는 공기 블로워, 물펌프 등 반응물 공급 장치가 있다. 그리고 배기가스에 다량으로 함유된 물을 회수하여 다시 개질 반응에 사용하기 위한 기액분리기 및 이온수지층전압, 탈황장치, 데이터 수집을 위한 각종 보드 등이 위치하고 있다. Fig. 1의 좌측에 보이는 것은 시스템 제어 및 모니터링을 위한 PC와 전자부하장치, 전력변환기 등이 장착된 부분이다.

2.3 고온박스 및 열교환망 설계

SOFC 시스템의 효율적인 열관리를 위해 운전 시 스택에서 발생하는 반응열과 미반응 가스를 연소시켜 얻은 열을 이용하여 스택의 온도유지, 반응물의 예열 및 연료개질기에 필요한 열량을 공급해야 한다. 각 부분의 온도를 고려하여 Fig. 2와 같이 고온박스 내부의 열교환망을 설계하였다.

스택에서 배출된 고온의 공기는 개질기에서 열

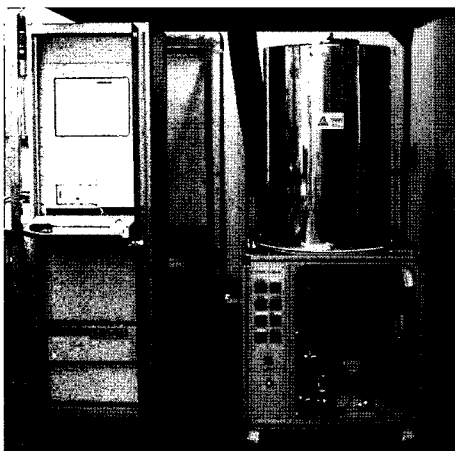


Fig. 1 Picture of KEPRI's 1 kW SOFC system.

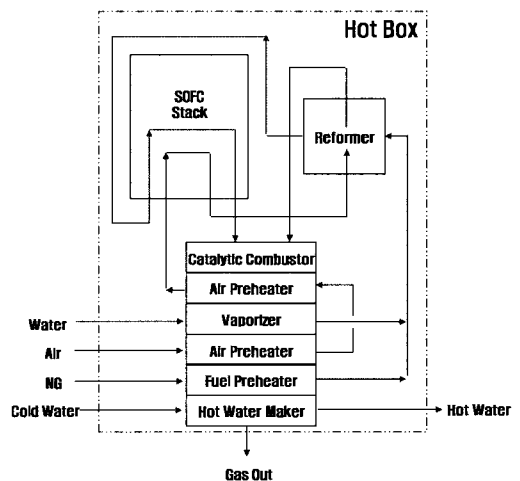


Fig. 2 Schematic diagram of gas flow and thermal management in the hot box.

교환을 하여 연료개질에 필요한 열량을 공급한 후 스택 미반응 연료와 고온박스 내부에 있는 촉매연소기에서 반응하여 연소가 일어난다. 촉매연소기 바로 아래에는 물이 공급되어 수증기로 변환하는 기화기가 있으며, 그 아래에는 공기 및 연료의 예열을 위한 열교환기가 장착되어 있다. 열교환기는 십자흐름(cross-flow) 형태로 수직방향으로 고온의 연소가스가 아래로 흐르면서 공급되는 가스와 열교환이 이루어진다. 시스템에 필요한 열을 공급하기 위해 열교환을 마친 배기가스는 대기로 방출되기 전에 마지막으로 온수 제조에 이용됨으로써 열병합 발전이 가능하도록 설계하였다.

3. 시스템 운전 및 성능시험

3.1 스택 성능시험

1kW 스택을 장착하고 정해진 순서에 따라 스택 전처리를 한 후, 전기로를 이용하여 고온박스 내부 온도를 조절하면서 스택 성능시험을 하였다. 연료극에는 MFC(mass flow controller)를 이용하여 수소와 질소를, 공기극에는 블로워를 이용하여 공기를 각각 공급하였으며(가스유량은 20℃, 1기압 기준), 직류전자부하기(american reliance, PLA 1.5k-120-200)로 전류를 인가하면서 스택출력 시험을 수행하였다. 이 때, 열교환기 및 시스템 내부에는 열전대와 압력계가 장착되어 온도와 압력을 측정하였다.

3.2 시스템 자열운전

전기로를 이용하여 1kW 스택 성능시험을 한 후, 안정된 운전 상태에서 전기로 출력을 끄고 외부의 열공급 없이 시스템 내부의 열만을 이용한 자열운전을 시작하였다.

스택 성능시험에서와 같이 MFC를 이용하여 연료극에 수소와 질소를 공급하면서 스택과 시스템이 안정된 운전상태를 유지할 수 있는 자열운전 조건을 정하였으며, 이러한 자열운전 조건에서 스택 및 시스템의 출력특성과 온도분포 등을 분석하였다.

수소를 이용한 자열운전 시험 후, 도시가스를 예

비개질기에서 개질하여 스택에 공급하면서 1kW 시스템의 자열운전 시험을 수행하였다. 도시가스 배관에서 공급되는 도시가스 압력은 약 200mm Aq. 밖에 되지 않아 압축기를 사용하여 약 1기압으로 가압한 후 MFC로 개질기에 공급하였다. 개질기에 공급되는 물은 운전 중 스택 배기가스에서 발생하는 응축수를 이온필터에서 정제한 후 사용하였다.

4. 실험결과 및 분석

4.1 스택 성능시험 결과

전기로의 온도는 750℃로 설정하였으며, 연료극에는 수소 19.2ℓ/min과 질소 9.6ℓ/min을 공급하였고, 공기극에는 86.4ℓ/min 유량으로 공기를 공급하였다.

Fig. 3은 위와 같은 조건에서 스택의 출력성능을 보여주고 있다. 스택의 개회로전압(open circuit voltage)은 52.9V로 셀당 약 1.1V(48 셀)가 나왔으며, 30A에서 40.75V, 1.22kW_e의 출력을 보였고, 50A에서는 32.15V, 1.61kW_e의 출력을 얻을 수 있었다. 50A 운전조건에서 연료이용률 U_f는 약 93.5%, 스택발전효율 E_s는 약 50%였다. 여기서 U_f와 E_s는 다음과 같이 구하였다.

$$U_f = \frac{nI}{2FV_f} \quad (1)$$

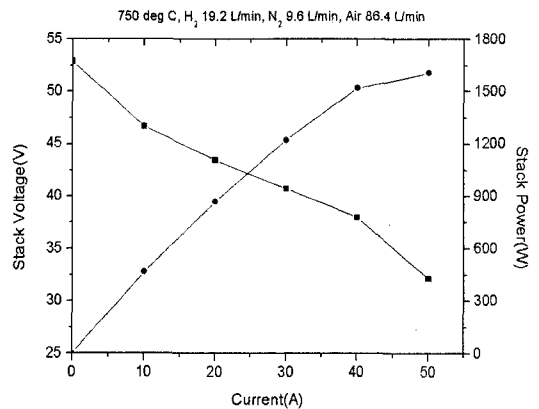


Fig. 3 Stack (48 cells) I-V-P characteristic curve, 750℃, H₂ 19.2 ℓ/min, N₂ 9.6 ℓ/min, air 86.4 ℓ/min.

$$E_s = \frac{P_s}{\Delta H_{f,L.H.V.} V_f} \quad (2)$$

4.2 수소를 이용한 자열운전 결과

전기로를 이용한 스택 성능시험을 완료한 후, 안정된 운전상태에서 전기로를 끄고 수소를 이용한 자열운전 시험을 수행하였다. 스택출력 및 고온박스 내부의 온도를 고려하여 연료극에 수소 14.9 l/min, 질소 14.1 l/min를 공급하고, 공기극에는 86.4 l/min의 공기를 공급하여 자열운전 조건을 정하였다. 이때 스택출력은 35A에서 1.31~1.35kW_e를 나타내었고, 스택 상판의 온도는 720~740℃, 스택 하판은 710~725℃를 유지하였다. 자열운전 조건에서 스택의 연료이용률 U_f는 84.3%였으며, 스택발전효율은 최고 54% 정도를 얻을 수 있었다.

Fig. 4는 스택 내부에 있는 각 셀들의 전압 분포를 나타내고 있다. 그림에서 볼 수 있듯이 가장 위쪽의 셀(48번 셀)을 제외하고는 비교적 균일한 셀 전압을 보여주고 있다. 이는 스택 상·하판의 온도차가 크지 않고, 스택 내부에서 셀 간의 가스분배가 원활히 이루어진 결과로 추측된다.

또한 핫박스 내부 온도유지와 스팀생성 및 연료와 공기 예열에 필요한 열량을 제공하기 위해 열교환을 끝낸 배기가스는 마지막으로 폐열을 회수하기 위해

온수제조를 하였다(Fig. 2 참조). 온수제조가 끝나고 최종적으로 배출되는 배기가스의 온도는 50℃ 미만 이 되었다. 온수제조를 통해 회수한 열량(Q'_{th})은 약 1.1kW_{th}이었으며, 이 때, 시스템의 열효율 E_{th}은 약 44%였다. 여기서 E_{th}는 다음과 같이 구하였다.

$$E_{th} = \frac{Q_{th}}{\Delta H_{f,L.H.V.} V_f} \quad (3)$$

열병합 발전을 통한 시스템 전체효율은 스택발전 효율과 열효율의 합으로 계산할 수 있으며, 수소를 이용한 본 시스템에서는 약 98%(higher heating value 기준으로는 약 83%)를 얻을 수 있었다. 하지만 실제 시스템 효율은 각종 BOP에서 소모된 전력과 전력변환기에서 발생하는 손실을 고려해야만 한다.

4.3 도시가스를 이용한 자열운전 결과

수소를 이용한 자열운전을 끝낸 후, 도시가스로 시스템 자열운전을 수행하였다. 앞서 수소로 자열운전한 결과를 바탕으로 하여 도시가스는 5.12 l/min, 개질기에 공급되는 물은 13.2g/min, 공기극에는 95 l/min의 공기를 공급하였다.

운전결과 35A에서 1.21~1.25kW_e의 스택출력을 얻을 수 있었다. Fig. 5는 스택 내부에 있는 각 셀들의 전압분포를 보여주고 있다. 앞서 수소운전 결과

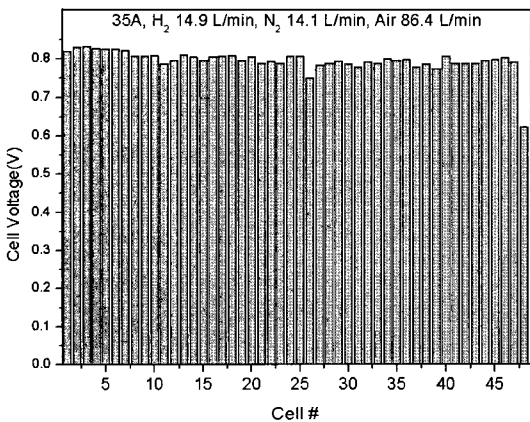


Fig. 4 Distribution of cell voltages under a self-sustainable operation condition using hydrogen.

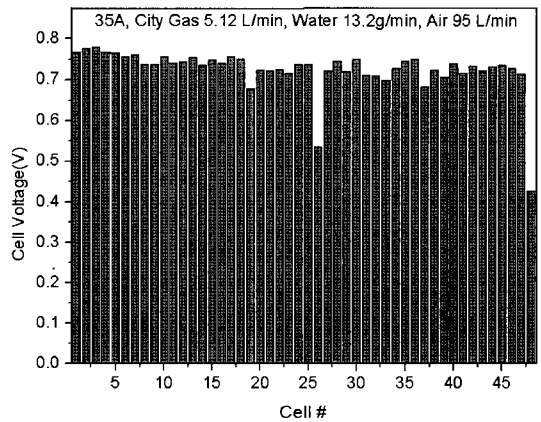


Fig. 5 Distribution of cell voltages under a self-sustainable operation condition using city gas.

와 비교할 때 스택출력이 낮은 것을 확인할 수 있는데, 이는 예비개질기와 스택 내부의 개질반응 및 개질에 필요한 물의 예열과 기화열로 인해 고온박스 내부의 발열량 감소로 스택의 온도가 낮아졌기 때문인 것으로 추측된다. 도시가스를 이용한 자열 운전 시 스택 상판과 하판의 온도는 685~690°C로 수소운전에 비해 약 25~35°C 낮은 결과를 보였다. 또한 예비개질기에 공급된 수증기의 맥동으로 인해 탄화수소 연료의 완전한 예비개질이 이루어지지 않아 탄소침적이 발생한 것도 스택 성능감소의 원인으로 분석된다.

한편 Fig. 4와 Fig. 5에서 26번 셀은 수소 운전 시에도 주변의 다른 셀과 비교해 성능이 낮고, 이후 도시가스 운전 시에 성능감소가 큰 것을 볼 수 있다. 이는 분리판과 셀의 불균일한 편평도로 인한 접촉불량 및 메니폴드에서 가스공급이 원활히 이루어지지 않았기 때문으로 추측된다.

5. 결 론

본 논문에서는 1kW급 SOFC 시스템의 자열운전을 위해 열교환망을 중심으로 시스템을 설계하고, 10×10cm² 단전지 48 장을 적층한 스택을 장착하여 수소 및 도시가스를 이용한 자열운전을 수행하면서 스택 및 시스템의 운전 특성을 분석하였다.

- 1) 1kW급 SOFC 시스템의 자열운전을 위해 시스템 내부에서 스택, 촉매연소기, 개질기, 각종 열교환기 등을 고온박스 내부에 배치하였다. 각 부분의 작동온도 및 열량흐름을 고려하여 배치가 되었으며, 통합된 열교환기 수직 방향으로 고온의 배기가스가 흐르면서 십자흐름 형태로 스팀 생성 및 공급가스 예열이 이루어지도록 열교환망을 설계하였다.
- 2) 전기로를 750°C로 유지하고 수소를 이용하여 스택 성능시험을 수행하였다. 50A에서 1.61kW_e의 출력을 얻었으며, 이때 연료이용률은 93.5%, 스택발전효율은 약 50%였다.
- 3) 수소 및 도시가스를 이용하여 시스템 자열운전을

수행하였다. 수소를 이용하여 35A에서 1.35kW_e의 안정된 출력을 얻을 수 있었으며, 이때 연료이용률은 84.3%, 스택발전효율은 54%를 얻었다. 배기가스의 폐열을 이용한 온수제조를 통해 1.1kW_{th}의 열량을 회수하였다.

- 4) 도시가스로 운전할 경우 35A에서 1.25kW_e의 스택 출력을 얻을 수 있었다. 탄화수소를 연료로 이용할 경우 스팀제조와 개질반응에 추가 열량이 소모되어 수소운전보다 스택출력이 낮았다. 또한 스택내부의 개질반응으로 스택 온도하강과 같은 열분포 문제가 나타났으며, 개질기에 공급되는 물과 연료의 혼합비율을 일정하게 유지시켜 줌으로써 탄소침적을 방지하는 것이 중요한 것으로 판단된다.

후 기

본 연구는 지식경제부의 “5kW급 열병합 고체산화물 연료전지 발전시스템 개발(2006-N-FC12-P-04)” 과제 일환으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

- 1) Ryan O'Hayre, Suk-Won Cha, Whitney Colella and Fritz B. Prinz, “FUEL CELL FUNDAMENTALS”, John Wiley & Sons, New York, 2006, pp. 3-19.
- 2) James Larminie and Andrew Dicks, “Fuel Cell Systems Explained”, 2nd Edition, John Willey & Sons, UK, 2003, pp. 3-24.
- 3) B.C.H. Steel and A. Heinzl, “Materials for Fuel Cell Technology”, Nature, 414[15], 2001, pp. 345-352.
- 4) O. Yamamoto, “Solid Oxide Fuel Cells : Fundamental Aspects and Prospects”, Electrochemical Acta, 45, 2000, pp. 2423-2435.
- 5) 김범주, 이정현, 김도형, 강승원, 임희천, “75 kW 용융탄산염 연료전지(MCFC) 스택 내 압력 손실 해석”, 한국수소 및 신에너지학회 논문집, Vol. 19, No. 5, 2008, pp. 367-376.