

2 모듈 스택을 이용한 SOFC 시스템 운전결과

이태희[†]

*한전전력연구원 녹색성장연구소

Operation Results of the SOFC System Using 2 Sub-Module Stacks

TAEHEE LEE[†]

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

ABSTRACT

A 5kW class SOFC cogeneration 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 stack, a fuel reformer, a catalytic combustor, and heat exchangers. A cold BOP part was composed of blowers, pumps, a water trap, and system control units. A 5kW stack was designed to integrate 2 sub-modules. In this paper, the 5kW class SOFC system was operated using 2 short stacks connected in parallel to test the sub-module and the system. A short stack had 15 cells with $15 \times 15 \text{ cm}^2$ area. When a natural gas was used, the total power was about 1.38 kW at 120A. Because the sub-modules were connected in parallel and current was loaded using a DC load, voltages of sub-modules were same and the currents were distributed according to the resistance of sub-modules. The voltage of the first stack was 11.46 V at 61A and the voltage of the second stack was 11.49V at 59A.

KEY WORDS : Solid oxide fuel cell(고체산화물 연료전지), Sub-module stack(모듈형 스택), Fuel reformer (연료개질기), Fuel cell system(연료전지 시스템), Balance of plant(시스템주변장치), Thermal management system(열교환망)

Nomenclature

P : power, W

E : efficiency, %

F : faraday constant, C/mol

V : flow rate, mol/s

H : enthalpy, J/mol

Subscripts

s : stack

f : fuel

L.H.V.: lower heating value

[†]Corresponding author : twhong@cjnu.ac.kr

[접수일 : 2010.8.12 수정일 : 2010.9.17 게재확정일 : 2010.10.20]

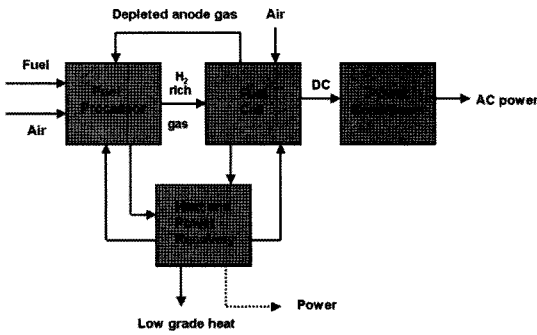


Fig. 1 Schematic of fuel cell system⁴⁾.

1. 서 론

연료전지는 연료가 갖는 화학에너지를 전기화학 반응을 통해 직접 전기로 변환시키는 장치로써, 연료의 공급에 의해 연속적인 발전이 가능하다. 에너지변환의 중간과정이 없기 때문에 기존의 발전장치와 비교해 효율이 높고 오염물질의 배출을 줄일 수 있다. 특히 수소를 연료로 사용할 경우 물 이외의 오염물질을 배출하지 않는 친환경 발전방식이다. 또한 이동용 및 소형발전에서 중대형 발전설비에 이르기까지 다양한 분야에 응용이 가능하고 모듈화를 통한 용량조절이 가능한 장점이 있다. 고체산화물 연료전지는 전해질 및 전극이 세라믹으로 구성되어 있어 운전온도가 높고(500~1000℃) 발전효율이 높으며, 열병합 및 복합발전 구성이 용이하다. 또한 다양한 연료를 사용할 수 있고 발전용량 조절이 용이하여 수송용 및 정치형 발전설비 등 다양한 분야에서 연구가 진행 중이다¹⁻³⁾.

연료전지 발전시스템은 스택이 안정적으로 운전될 수 있도록 스택의 특성에 맞춰 설계해야 한다. Fig. 1은 연료전지 발전시스템의 구성도인데 스택을 중심으로 천연가스 및 탄화수소계 연료를 스택에서 이용할 수 있도록 수소가 다량 함유된 가스로 변환해 주는 연료개질기, 연료전지에서 생산된 직류 전력의 전압을 조절하고 교류로 변환시켜 주는 전력변환장치(PCS, power conditioning system), 열교환시스템 등으로 구성되어 있다.

전력연구원에서는 평판형의 연료극 지지체식

SOFC 단전지 및 스택과 이를 이용하여 전력과 온수를 동시에 생산할 수 있는 가정용(RPG, residential power generation) 및 상업용(CPG, commercial power generation) 열병합 발전시스템 개발을 목표로 하고 있다. 5kW급 스택은 15 × 15cm² 크기의 단전지를 이용한 2개의 모듈로 구성이 되었다. 본 논문에서는 현재 전력연구원에서 개발 중인 5kW급 SOFC 시스템을 이용하여 15 × 15cm² 단전지 15 장으로 구성된 모듈 2 개를 병렬로 연결한 스택의 운전결과를 정리하였다.

2. SOFC 스택 및 시스템 제작

2.1 모듈 스택 제작

NiO와 8mol% YSZ(yttria-stabilized zirconia) 분말을 일축가압 방법으로 성형하고 1400℃에서 1시간 동안 열처리를 하여 연료극 지지체를 제조하였다. 가스결된 지지체 위에 상대적으로 치밀한 구조의 연료극 기능층(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 제조하였다⁵⁾.

SOFC 시스템에서 최종적으로 공급하는 교류 출력을 얻기 위해서는 스택에서 생산되는 DC 출력에서 전력변환과정에서의 손실과 각종 펌프 및 블로워 등에서 소비되는 전력을 제외해야만 한다. 전력변환기의 효율을 90% 이상으로 하고 시스템 소비 전력을 800W 이하로 가정했을 때 시스템에서 5kW 출력을 얻기 위해서 스택은 약 6.4kW 이상의 DC 출력을 낼 수 있어야만 한다. 이러한 점들을 고려하여 5kW급 SOFC 스택을 제작하기에 앞서 먼저 15 × 15cm² 크기의 평판형 단전지를 이용한 소형 모듈 스택으로 기본적인 성능시험을 하였다. 모듈 스택은 15 × 15cm² 크기의 단전지 15 장과 ferritic 계의 금속분리판 및 유리조성의 고온 밀봉재를 적층하여 제작하였다. 분리판과 단전지 사이에는 집전체로 니켈 또는 인코넬 메쉬가 삽입되었다. Fig. 2는 15 × 15cm² 크기의 단전지 15 장으로 구성된 2 모듈

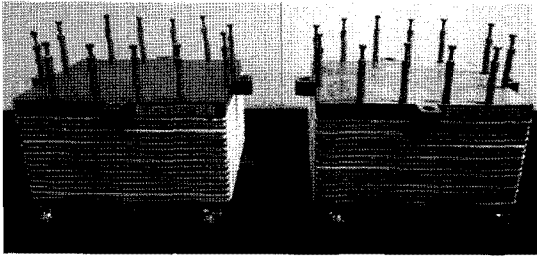


Fig. 2 Sub-module stacks composed of 15 cells with 15 × 15 cm² area.

스택을 보여주고 있다.

2.2 시스템 설계 및 제작

5kW급 SOFC 시스템은 2 모듈 스택에 맞게 설계 및 제작되었다. 시스템 상부에 고온박스가 있고 그 내부에 작동온도가 높은 스택, 연료개질기, 촉매연소기, 기화기, 열교환기 등이 위치하고 있다. 시스템 내부에서 열이 발생하는 곳은 스택과 촉매연소기이고 열을 필요로 하는 곳은 기화기, 개질기, 반응물 예열을 위한 열교환기 등이다. 효율적인 열관리를 위해 열원(heat source)과 열흡수원(heat sink)의 열용량과 온도를 고려하여 열교환망을 설계하였다. Fig. 3은 5kW급 시스템 고온박스의 개략적인 내부 구성도이다.

스택의 연료이용율을 고려하여 스택 내부에서 전기화학반응에 참여하지 않은 연료극 배기가스는 촉매연소기에서 공기극 미반응 가스와 연소반응을 통해 고온의 배기가스가 만들어진다. 이 배기가스가 고온박스 내부를 흐르면서 기화기 및 각종 열교환기에 필요한 열량을 공급해 준다. 촉매연소기에서 만들어진 고온의 배기가스는 공기 및 연료를 예열하는 열교환기 부분과 연료개질기에 공급되는 기화기로 나뉘어져 열교환을 한다. 반응물 예열부와 기화기의 온도를 제어하기 위해 밸브가 장착되어 압력을 조절함으로써 배기가스의 양을 제어하도록 설계하였다.

열병합 발전 및 시스템 냉각을 위해 고온박스 아래쪽으로 물 라인이 지나간다. 반응물 예열 및 기화기와 열교환을 모두 끝낸 배기가스는 최종적으로

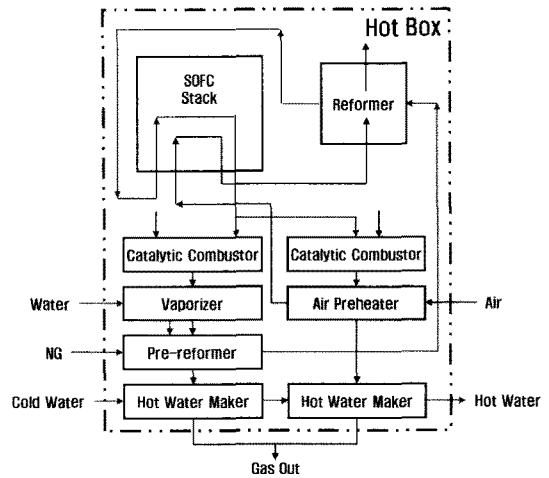


Fig. 3 Schematic diagram inside the hot box for the 5kW SOFC system.

냉각수와 열교환을 하여 온수를 만들어 온수저장탱크로 보내진다. 열교환을 모두 끝낸 배기가스는 기액분리기를 거친 후 대기로 배출된다. 기액분리기에 모인 물은 펌프를 이용하여 다시 기화기로 보내져서 연료개질에 이용된다.

기화기에서 만들어진 수증기는 공급된 연료와 혼합되어 예개질기(pre-reformer)로 들어간다. 예개질기는 작동온도를 고려하여 고온박스에서 온도가 낮은 하부에 위치하고 있다. 예개질기에서 1차적으로 개질이 된 연료는 다시 수증기개질기(steam reformer)에서 반응이 일어난 후 2 개의 모듈로 공급된다. 운전 중 스택 내부의 온도가 적절한 범위를 넘어서 계속 상승하게 될 경우 분리판 및 밀봉재의 문제가 발생하게 된다. 이를 해결하기 위해 예개질기에서 1차적으로 개질이 된 연료 가운데 일부는 수증기개질기를 거치지 않고 바로 스택으로 공급하여 스택 내에서 내부개질반응(internal reforming)을 통해 스택 온도를 떨어뜨릴 수 있도록 설계하였다. 개질기는 스택 바로 옆에 위치하고 있으며 스택에서 배출되는 공기와 열교환을 통해 개질반응에 필요한 열을 공급받는다. 연료극 미반응 가스의 일부를 수증기개질에서 연소할 수 있는 장치를 추가하여 개질기 온도를 제어할 수 있도록 하였다.

Table 1 Flow rates of reactants per a module operated with hydrogen

Anode		Cathode
H ₂ (SLM)	N ₂ (SLM)	Air (SLM)
12.00	6.00	54.00

5kW SOFC 시스템 하부에는 반응물 공급을 위한 각종 펌프와 블로워, 탈황장치, 기액분리기 등이 위치하고 있다. 15 × 15cm² 단전지를 이용한 2 개의 모듈에서 나오는 DC 전력을 각각 DC/DC 컨버터가 병렬로 전압을 조절해 주고, 후단에 연결된 DC/AC 인버터가 AC로 변환한 후 계통에 전력을 공급하도록 전력변환장치를 설계하였다.

3. 모듈 스택 운전 및 성능시험

3.1 수소를 이용한 성능시험

15 × 15cm² 크기의 단전지 15 장을 적층한 모듈 2 개를 전기적으로 병렬연결이 되도록 시스템에 설치하였다. 성능시험에 앞서 정해진 절차에 따라 단계적으로 전기로의 온도를 올리면서 스택 제조 시 사용된 밀봉재와 바인더 등의 유기물을 제거하고, 수소 및 공기를 주입하면서 연료극과 공기극이 정상적으로 성능을 낼 수 있도록 전처리 과정을 수행하였다. 전처리를 위한 반응물 공급은 별도의 MFC (mass flow controller) 모듈을 이용하였으며, 전처리 시 스택에 일정한 면압을 가함으로써 스택의 밀봉 및 전기적 접촉성을 향상시키는 과정도 함께 실시되었다.

전처리가 끝난 스택은 전기로를 이용하여 온도를 제어하고 정량적으로 반응물을 공급하면서 성능시험을 수행하였다. 연료극에는 MFC를 이용하여 수소와 질소를 공급하였고, 공기극에는 블로워를 이용하여 공기를 공급하였다. Table 1은 15 × 15cm² 크기 단전지 15셀을 적층한 1 모듈의 반응물 공급량을 나타내고 있으며, 2 개의 모듈에 대해 동일한 유량으로 각각 반응물을 공급하였다.

성능시험은 직류전사부하장치를 이용하여 인가

Table 2 Flow rates of reactants per a module operated with natural gas

Anode		Cathode
NG (SLM)	Water (g/min)	Air (SLM)
3.52	8.50	54.00

전류를 변화시키면서 단전지 및 스택의 출력을 측정하는 방법으로 수행되었다. 2 개의 모듈을 전기적으로 병렬로 연결된 상태에서 전류를 인가하여 전체 스택의 성능시험을 수행하였다.

3.2 천연가스를 이용한 성능시험

수소를 이용한 스택의 성능시험을 완료한 후 연료를 천연가스로 전환하고 성능시험을 수행하였다. 천연가스는 기화기에서 만들어진 수증기와 혼합되어 예개질기 및 수증기개질기에서 전환된 후 병렬로 연결된 모듈 스택 연료극에 각각 공급되었다. 이때, 천연가스는 압축기를 이용하여 정량적으로 공급하였고, 물은 펌프를 이용하여 개질기에 공급하였다. 공기극에는 블로워를 이용하여 공기를 공급하였다. 스택 및 개질기 입·출구 쪽에는 개질가스 조성분석을 위한 별도의 배관을 설치하여 운전 중 개질기의 상태를 확인하였다.

Table 2는 15 × 15cm² 크기 단전지 15셀을 적층한 1 모듈에 공급된 반응물의 양을 나타내고 있다. 천연가스 유량은 수소운전과 동일한 발열량을 공급하는 조건으로 결정이 되었으며, 운전 시 탄소침적을 억제하기 위해 수증기와 탄소 비율을 약 3.0으로 유지하도록 물을 공급하였다⁶⁾. 탄소침적이 발생할 경우 개질기 및 스택에 심각한 문제를 일으킬 수 있으므로 저울을 이용하여 수시로 공급되는 물의 양을 확인하였다.

수소 운전과 달리 천연가스를 이용한 성능시험에서는 반응물 예열과 수증기 생성 및 연료개질에 필요한 열을 모두 고온의 배기가스와 스택 발생열을 이용하여 적절히 공급해야만 한다. 다양한 반응조건과 상황에 따라 각 부위의 온도를 제어하기 위하여 스택 배기라인 주요 부분에 밸브를 설치하여

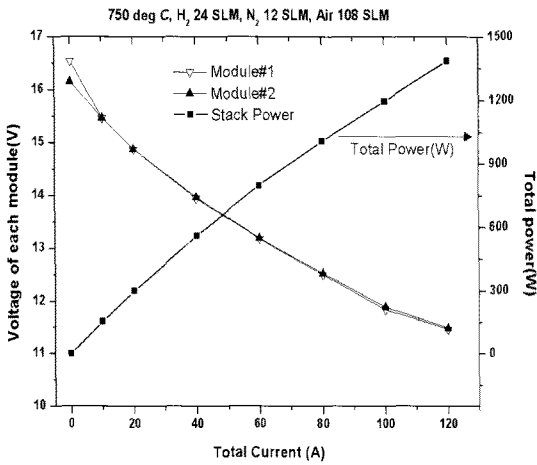


Fig. 4 Voltage of each module and total power of stack according to current, operated with hydrogen at 750°C.

압력차이로 배기가스의 유량을 조절함으로써 주요 부위의 온도를 제어할 수 있도록 설계하였다. 이때 스택 및 시스템 주요 부위에는 열전대와 압력센서를 이용하여 내부 상황을 계측하였다. 성능시험은 병렬로 연결된 2 개의 모듈에 직류전자부하장치를 이용하여 인가전류를 변화하면서 수행하였다.

4. 결과 및 분석

4.1 수소 운전 결과

전기로를 이용하여 고온박스 내부 온도를 750°C로 유지하고 MFC 및 블로워를 이용하여 각 모듈별로 Table 1과 같이 수소 및 반응물을 공급하면서 2 모듈에 대한 성능시험을 수행하였다. 이때, 스택 상부의 온도는 약 760~770°C, 스택 하부의 온도는 약 730°C 정도로 계측되었다.

Fig. 4는 병렬로 연결된 2 개의 모듈을 수소를 이용하여 운전한 결과이며, Table 3은 이를 표로 정리한 것이다. 스택 전체에 인가된 전류를 0~120A 까지 단계적으로 증가시킴에 따라 모듈#1과 모듈#2의 전압 및 전체 스택의 출력을 보여주고 있다. 표에서 보면 O.C.V.의 경우 모듈#1은 16.55V, 모듈#2는 16.16V로 약 0.4V의 차이가 난다. 하지만 전류가 인가될

Table 3 Performance of 2 modules connected in parallel, operated with hydrogen at 750°C

Current (A)	Module#1 (15 cells)		Module#2 (15 cells)	
	Current(A)	Voltage(V)	Current(A)	Voltage(V)
0	0	16.55	0	16.16
10	5.5	15.48	4.5	15.48
20	10	14.88	10	14.89
40	20	13.95	20	13.97
60	30	13.18	30	13.20
80	40	12.50	40	12.54
100	50	12.20	50	12.24
120	59	11.58	61	11.64

경우 모듈#1과 모듈#2의 전압은 그림과 같이 거의 동일한 것을 알 수 있다. 이는 하나의 전자부하장치를 이용하여 병렬로 연결된 2 개의 모듈에 전류를 인가하였기 때문이다. 즉, 두 개의 스택이 병렬로 연결된 상황에서 전자부하장치에서 인가된 전류는 두 개의 모듈에 나누어져 흐른다. 이 때 각 모듈의 전압은 등전위면으로 동일해야 한다. 수소운전 결과 전체인가전류가 120A일 경우 모듈#1은 59A가 인가되어 11.58V의 전압을 보였고, 모듈#2는 61A가 인가되고 11.64V의 전압을 나타내었다. 이때 전체 스택출력은 약 1393W를 얻을 수 있었다. 120A 운전조건에서 스택발전효율 Es는 약 32.3%였다. 여기서 Es는 다음과 같이 구하였다.

$$E_s = \frac{P_s}{\Delta H_{f.L.H.V.} V_f} \quad (1)$$

4.2 천연가스 운전 결과

수소 운전과 동일하게 전기로를 이용하여 고온박스 내부 온도를 750°C로 유지하고 각 모듈별로 Table 2와 같이 반응물을 공급하면서 2 모듈에 대한 성능 시험을 수행하였다. 인가전류에 따라 스택 상부 온도는 약 772~782°C, 스택 하부는 약 728~735°C 정도가 되었다. 수증기개질기 내부는 약 770~775°C, 예개질기 상부 온도는 약 350°C 내외로 개질기 내

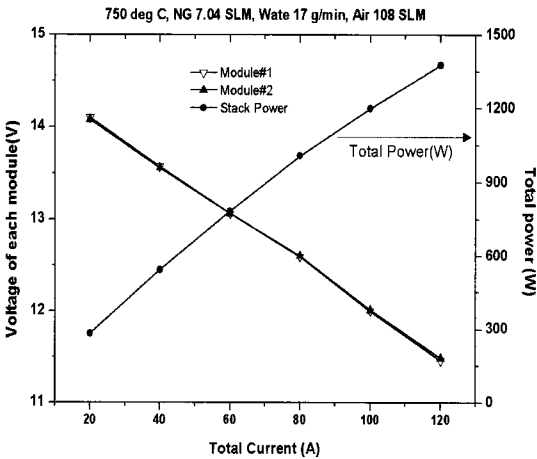


Fig. 5 Voltage of each module and total power of stack according to current, operated with NG at 750°C.

Table 4 Performance of 2 modules connected in parallel, operated with NG at 750°C

Current (A)	Module#1 (15 cells)		Module#2 (15 cells)	
	Current(A)	Voltage(V)	Current(A)	Voltage(V)
20	11.5	14.10	8.5	14.08
40	21.0	13.57	19.0	13.56
60	31.5	13.06	28.5	13.06
80	41.0	12.59	39.0	12.60
100	51.0	12.00	49.0	12.01
120	61.0	11.46	59.0	11.49

부의 촉매에서 정상적인 개질반응이 일어날 수 있는 온도 범위였다. 본 시스템은 5kW급 스택에 맞게 열교환기 및 각종 BOP 설계가 이루어졌으므로 자율운전이 불가능하여 전기로가 외부에서 추가적인 열을 공급하였기 때문에 위의 온도분포를 얻을 수 있었던 것으로 판단된다.

Fig. 5는 병렬로 연결된 2 개의 모듈을 천연가스를 이용하여 운전한 결과며, 이를 Table 4에 정리하였다. 스택 전체에 인가된 전류를 120A 까지 단계적으로 증가시키에 따라 모듈#1과 모듈#2에 인가되는 전류 및 전압, 스택 전체 출력을 보여주고 있다. Table 4를 보면 모듈#1에 인가되는 전류가 모듈#2에 인가되는 전류보다 전 영역에 걸쳐 더 큰 것을 확인할 수 있다. 이는 병렬로 연결된 2 개의 모듈에 전자부하장치로 동시에 전류를 인가할 경우 상대적으로 저항이 작은 모듈#1으로 더 많은 전류가 인가되었기 때문이다. 모듈#1과 모듈#2는 등전위면으로 동일한 전압을 가져야 하나 약간의 차이가 난다. 전력인출선 외부에서 스택 전압을 측정할 경우 전류인출선 및 연결봉의 저항 때문에 전압손실이 발생하게 된다. 또한 측정선의 길이 및 접촉 상태에 따라서도 측정된 전압 값이 달라질 수 있다. 따라서 측정된 전압의 차이는 이러한 전압측정선의 상태 및 계측기계의 오차 때문인 것으로 판단된다.

천연가스 운전 시 120A에서 모듈#1은 61A가 인가되어 11.46V의 전압을 보였고, 모듈#2는 59A가 인가되어 11.49V의 전압을 나타내었다. 전체 스택출력은 약 1377W를 얻을 수 있었으며, 스택발전효율은 약 30.0%였다. 천연가스 운전 결과와 수소 운전 결과를 비교해 보면 동일한 스택 전류 조건에서 모듈#1과 모듈#2에 인가되는 전류의 양이 다른 것을 확인할 수 있다. 스택 전류가 120A에서 수소 운전의 경우 모듈#1이 59A, 모듈#2가 61A가 인가된 반면 천연가스 운전 시에는 모듈#1이 61A, 모듈#2가 59A가 인가되었다. 이러한 결과는 수소 운전 시와 천연가스 운전 시 각 모듈별로 공급된 반응물의 양이 달라지거나, 모듈#2가 상대적으로 더 큰 성능열화가 발생하여 전체적인 저항이 더 증가했기 때문으로 추측된다.

실제 5kW SOFC 시스템 운전 시에는 전자부하장치가 아닌 전력변환장치로 계통에 연계되어 운전된다. 이 경우에는 2개의 모듈에서 나오는 DC 전력을 각각 DC/DC 컨버터가 병렬로 전압을 조절해 주고, 후단에 연결된 DC/AC inverter가 AC로 변환한 후 계통에 전력을 공급하도록 설계되었다. 따라서 이 경우에는 각 모듈에 인가되는 전류를 독립적으로 제어할 수 있으므로 하나의 전자부하장치로 운전할 때 모듈별 저항의 차이에 따른 인가전류량의 차이와 같은 문제는 발생하지 않는다.

4. 결 론

본 논문에서는 5kW급 SOFC 시스템을 설계 및

제작하고 $15 \times 15\text{cm}^2$ 크기의 단전지 15 장을 적층한 모듈 2 개를 병렬로 연결한 스택을 장착하여 수소와 천연가스를 이용한 성능시험을 수행함으로써 5kW SOFC 시스템 및 모듈 스택의 운전 특성을 분석하였다.

- 1) 5kW SOFC 시스템은 $15 \times 15\text{cm}^2$ 크기의 단전지를 이용한 2 모듈 스택으로 설계 및 제작되었다. 시스템 고온박스 내부에는 스택, 촉매연소기, 수증기개질기 및 예개질기, 각종 열교환기 등이 작동온도와 열용량에 따라 배치되어 효율적인 열관리가 이루어지도록 설계하였고, 주요 부분의 온도를 제어할 수 있도록 밸브를 추가하였다.
- 2) $15 \times 15\text{cm}^2$ 단전지 15 장으로 제작된 모듈 2 개를 병렬로 연결한 후 수소를 이용하여 750°C 에서 운전한 결과 120A에서 약 1393W의 출력을 얻었으며, 약 32.3%의 스택발전효율을 얻었다.
- 3) 2 모듈 스택을 천연가스를 이용하여 750°C 에서 운전한 결과 120A에서 약 1377W의 출력을 얻었으며, 약 30.0%의 스택발전효율을 얻었다.
- 4) 병렬로 연결된 모듈에 하나의 전자부하로 전류를 인가할 경우 각 모듈의 저항에 따라 인가전류가 나누어져 흐르게 된다. 따라서 모듈로 스택을 설계할 경우 전력변환장치는 각 모듈에 인가되는 전류를 독립적으로 제어하여 전압을 조정 한 후 이를 직류전력으로 변환하도록 설계해야만 한다.

후 기

본 연구는 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받은 “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) N. Q. Minh and T. Takahashi, “Science and Technology of Ceramic Fuel Cells”, Elsevier, Amsterdam, Netherlands, 1995, pp. 3-19.
- 4) P. F. van den Oosterkamp, “Critical issues in heat transfer for fuel cell systems”, Energy Conversion and Management, Vol. 47, 2006, pp. 3552-3561.
- 5) 이태희, 최진혁, 박태성, 유영성, 남석우, “1 kW 고체산화물 연료전지(SOFC) 시스템 설계 및 자열운전”, 한국수소 및 신에너지학회 논문집, Vol. 20, No. 5, 2009, pp. 384-389.
- 6) Tatsuya Takeguchi, Yukimune Kani, Tatsuya Yano, Ryuji Kikuchi, Koichi Eguchi, Keigo Tsujimoto, Yoshitaka Uchida, Akira Ueno, Koji Omoshiki and Masanobu Aizawa, “Study on steam reforming of CH_4 and C_2 hydrocarbons and carbon deposition on Ni-YSZ cermets”, Journal of Power Sources, Vol. 112, 2002, pp. 588-595.