

## 전기 부하에 따른 용융탄산염 연료전지 스택 온도 분포에 관한 수치 해석 연구

김도형<sup>†</sup>, 김범주\*, 이정현\*, 강승원\*, 임희천\*

\*한전 전력연구원, 한국전력공사

## Numerical Studies of Cell Temperature Distribution in MCFC Stack According to Electrical Loads

DOHYUNG KIM<sup>†</sup>, BEOMJOO KIM\*, JUNGHYUN LEE\*, SEUNGWON KANG\*, HEECHUN LIM\*

\*Korea Electric Power Research Institute, 65 Munji-Ro, Yuseong-Gu, Daejeon-Si, 305-380, Korea

### ABSTRACT

A numerical stack model has been developed to predict the temperature at a constant-load operation of molten carbonate fuel cell stacks. For the validity of the model, the simulated results with several boundary conditions were compared in the cell temperature data obtained from 75 kW class MCFC stack operation. It was shown that the simulated results with the existing boundary condition, which the stack outlet temperature was fixed at 650°C, didn't match well with the measured data. On the other hand, the stack model with the outlet temperature modified by the outlet manifold temperature measured from the stack under several electric loads was found to explain the measured cell temperature distribution well. The results show that the model can be used to predict the cell temperature distribution in the stacks by the measurement of the manifold outlet temperature.

**KEY WORDS** : Stack(연료전지 스택), Computational fluid dynamics(전산유체역학), Temperature distribution(온도분포), Molten carbonate fuel cell(용융탄산염 연료전지)

### 1. 서 론

미래의 새로운 대체 에너지 발굴 및 환경에 대한 이슈가 발전용 연료전지 개발에 있어서 커다란 동기를 부여하고 있다. 이에 따라 발전용 연료전지의 스택은 점차 대형화, 대용량으로 개발되고 있다.

연료전지 스택의 대형화가 진행됨에 따라 스택

내부에서 전기 화학반응에 의하여 발생하는 열량의 증가로 인한 문제는 스택의 수명과 직접적인 연관이 있다. 전기 부하에 따른 스택 내부의 생성열에 의해 고온부가 한계온도를 초과하면 전지구성요소, 특히 전해질의 미세구조 변화나 열화속도 등을 가속시켜 장기운전에 큰 장애요인이 된다<sup>1)</sup>. 이에 대해 스택 내부의 온도 예측을 위한 많은 전산 모사 연구가 진행되어 왔다<sup>2-4)</sup>.

본 연구에서는 75kW급 MCFC 스택의 부하 운전

<sup>†</sup>Corresponding author : 05100216@kepco.co.kr

[ 접수일 : 2010.7.29 수정일 : 2010.8.19 게재확정일 : 2010.8.20 ]

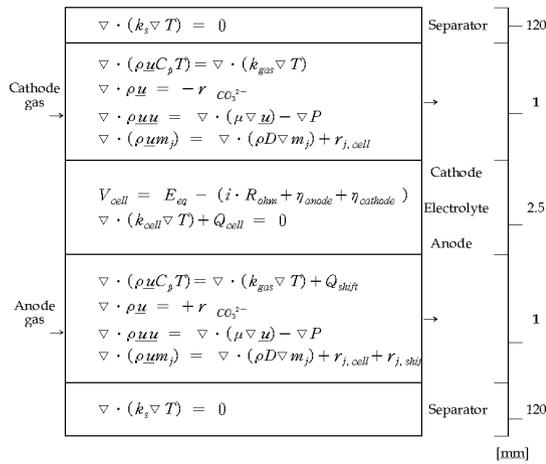


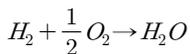
Fig. 1 MCFC unit cell and governing equations of the model.

결과와 전산 모사 결과를 비교 평가한 후 전산 모사 모델의 정확성을 위한 경계 조건에 대해 기술하고자 한다.

## 2. 스택 전산 해석 모델

Fig. 1은 기존 개발된 스택 전산 해석 모델에서 스택을 구성하는 단위전지와 계산에 필요한 지배 방정식을 나타낸다<sup>2,3)</sup>. 단위 전지의 기본 구성에서 양극, 음극, 전해질과 전해질 지지체는 하나의 전지 층으로 가정하고, 전지 층과 분리판, 그리고 전지 층 양쪽 연료 가스 및 공기 통로가 모델에서 하나의 단위전지를 구성한다. 모델에 대한 구체적인 사항은 기존 보고 된 참고문헌에 자세히 나타나 있다<sup>2,3)</sup>.

Fig. 1에 나타난 지배방정식에 대해 간단히 기술 하면, 연료 전지 작동시의 온도 상승은 전기화학 반응이 발열 반응이기 때문인데, 양극과 음극에서의 반응을 합한 총괄 반응에 대한 엔탈피 변화를 온도의 함수로 나타내면 다음과 같다.



$$\Delta H_{f, H_2O} = -(240506 + 7.3835 T) \quad [J/mol]$$

이와 같은 엔탈피의 변화량 중에서 전기에너지로

변환되는 양( $i \cdot V_{cell}$ )을 제외한 열 발생량은 다음과 같이 계산된다.

$$q = (-\Delta H_{f, H_2O}) \frac{i}{zF} - i \cdot V_{cell} [W/cm^2]$$

위의 전기화학 반응 이외에 연료극에서 진행되는 water-gas-shift 기상 반응에서도 엔탈피 변화가 수반된다. 이 반응의 엔탈피 변화를 온도의 함수로 나타낸 식은 다음과 같다.



$$\Delta H_{shift} = -43729.1 + 9.4657 T \quad [J/mol]$$

Water-gas-shift 반응에 의한 열량 변화는 전지 반응시의 생성 열량에 비해 상대적으로 작아서 스택의 온도에 크게 영향을 주지 않는다.

이러한 발생된 열은 가스 상에서 대류와 전도에 의해 전달되고, 전지와 분리판에서는 전도에 의해 전달되므로 각 층에 대해 각각 하나씩의 열에너지 보존식이 필요하다.

물질 전달의 경우는 전지 층에서 물질 전달이 빠르다고 가정하면 물질 전달은 기체상에서만 진행된다. 따라서 각 기체층에 존재하는 성분 수 만큼의 물질수지 식이 필요하다. 정상 상태에서 연료극인 음극에는 수소, 이산화탄소, 일산화탄소, 수분의 네가지 기체 성분이 존재하며, 산소극인 양극에는 이산화탄소, 산소, 질소가 존재하므로 하나의 단위 전지에서 필요한 물질수지 식은 7개이다. 한편 기체 유동 압력 및 유체 거동을 정밀히 해석하기 위해서 운동량 보존식 및 질량 보존 방정식(또는 연속 방정식, mass continuity)이 사용되었다.

전지에 일정한 전류 밀도( $i$ )의 부하가 걸릴 때 얻어지는 전지 전압( $V_{cell}$ )은 열역학적 평형 전압( $E_{eq}$ )에서 비가역성 손실에 해당하는 내부 저항( $R_{ohm}$ )에 의한 손실, 그리고 과전압( $\eta_{anode}, \eta_{cathode}$ )을 제외한 전위차 수치식에서 계산된다. 평형 전압은 반응 기체 분압의 감소에 의한 Nernst loss를 고려한 전위차로서, 표준 상태 평형 전압과 온도 및 반응 기체 분압의 함수인 Nernst 식에 의해서 계산하였다<sup>2,3)</sup>.

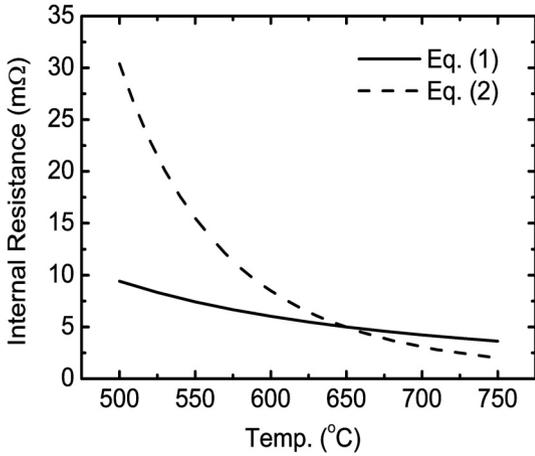


Fig. 2 Internal resistance with the cell temperature in Eq. (1) and Eq. (2).

Fig. 1의 전압 식에서 내부 저항, 연료극 과전압, 그리고 공기극 과전압의 경우는 실험 측정치에 근거하여 적용하는데, 기존의 스택 전산 해석 모델에서 사용되어진 함수는 Wilemski<sup>5)</sup>가 실험에서 얻은 식으로서 아래와 같다.

$$R_{ohm} = 0.5 \times 10^{-4} e^{3016(\frac{1}{T} - \frac{1}{923})} [\Omega \cdot m^2] \quad (1)$$

최근 발표 된 Brouwer et. al<sup>4)</sup>은 위 식을 보정하여 아래와 같은 식으로 보고 하였다.

$$R_{ohm} = 0.5 \times 10^{-4} e^{8600(\frac{1}{T} - \frac{1}{923})} [\Omega \cdot m^2] \quad (2)$$

Fig. 2는 Eq. (1)과 Eq. (2)에서 전지 온도 변화에 따른 내부 저항의 변화를 나타낸다. 그림에서 볼 수 있듯이 Eq. (1)의 내부 저항 변화는 매우 완만한 반면에, Eq. (2)의 내부 저항 변화는 상대적으로 매우 크게 변화하는 것을 알 수 있다. 이들의 차이는 온도가 낮을수록 매우 크게 벌어지는 것을 보여준다. 전해질 녹는점이 480°C 부근의 온도라는 점을 고려하면, 전해질 녹는점 영역에서는 내부 저항이 크게 증가하는 것이 더 타당할 것으로 사료된다. 이러한 높은 저항값은 100cm<sup>2</sup> 단위전지 실험 결과로부터 이미 입증되었다. 그래서 현 스택 모델은 Eq. (2)를 적

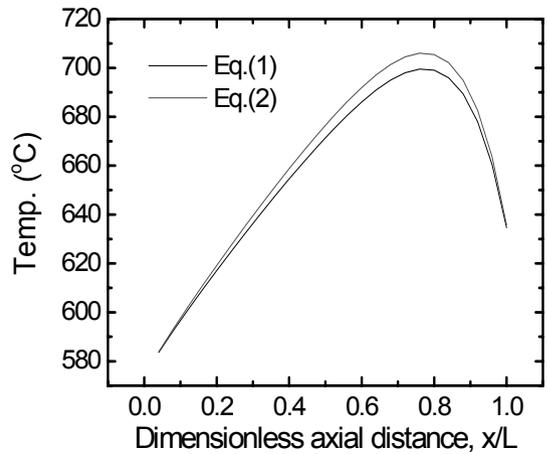


Fig. 3 Cell temperature profiles according to Eq. (1) and Eq. (2).

용하여 계산이 진행되었다.

Fig. 3은 모든 변수는 동일 조건하에 위의 내부 저항식 Eq. (1)과 Eq. (2)에 따른 스택 내부 온도 Profile을 나타내고 있다. 그림에서 볼 수 있듯이 온도가 가장 높은 영역에서 약 4°C 정도의 차이를 나타내는데, 이는 스택 입구 온도가 580°C 부근으로, Fig. 2에서 볼 수 있듯이 그 온도영역에서 내부 저항 차이가 상대적으로 작아 발생하는 열량 역시 크게 차이가 나지 않기 때문이다. 입구 온도가 낮아지면 두 식에 의한 온도 차이는 더욱 커질 것이다.

### 3. 스택 전산 해석 결과

75kW급 스택의 전산 모사를 실행하기에 앞서 Eq. (2)에서 내부 저항 상수값을 0.5X10<sup>-4</sup>Ω·m<sup>2</sup>에서 0.9X10<sup>-4</sup>Ω·m<sup>2</sup>로 수정하였다. 대형 스택에서 내부 저항값을 측정하는 것은 실험적으로 거의 불가능하다. 그래서 기존 5kW급 스택 실험 데이터로부터 얻은 I-V 곡선을 통해 다른 연료극 과전압과 공기극 과전압은 일정하다고 가정한 조건에서 오직 내부 저항을 변수로 하여 전압 강하를 분석하였다. 그 결과 대략적으로 0.9X10<sup>-4</sup>Ω·m<sup>2</sup> 정도의 내부 저항값이 산출되었다.

Fig. 4는 768A 전기 부하 조건 하에서 스택 전산

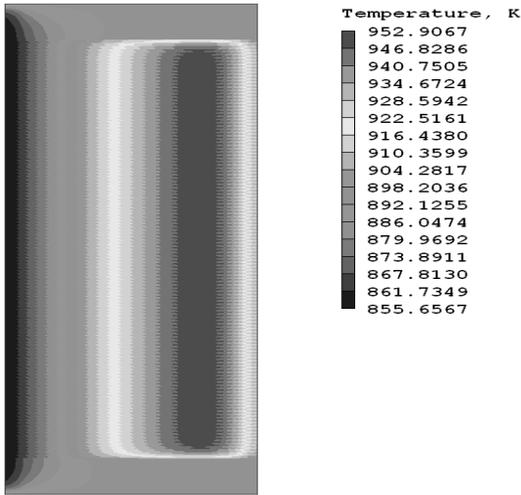


Fig. 4 Cross-sectional temperature distribution in 75 kW class MCFC stack.

모사 결과를 나타내고 있다. 전형적인 co-flow 형태의 스택 온도 분포를 나타낸다. 이러한 전산 모사를 통해 각 전기 부하에 따른 가스 흐름 방향에 대한 온도 profile을 Fig. 5에 나타내었다. 기존 문헌에서 보고 된 바와 같이 부하가 증가할수록 고온부의 온도가 상승하는 것을 알 수 있다.

Fig. 6은 부하에 따른 출력 및 평균 전압을 나타

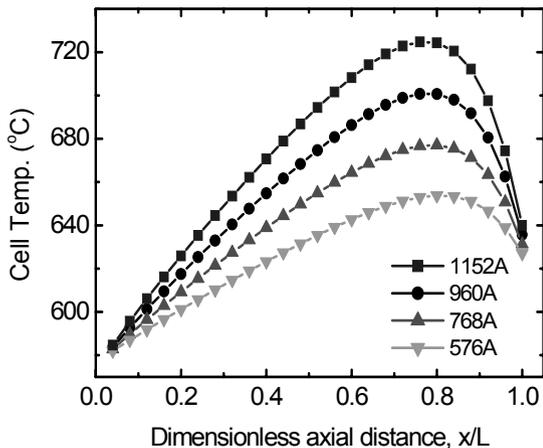


Fig. 5 Cell temperature profiles under several electrical load.

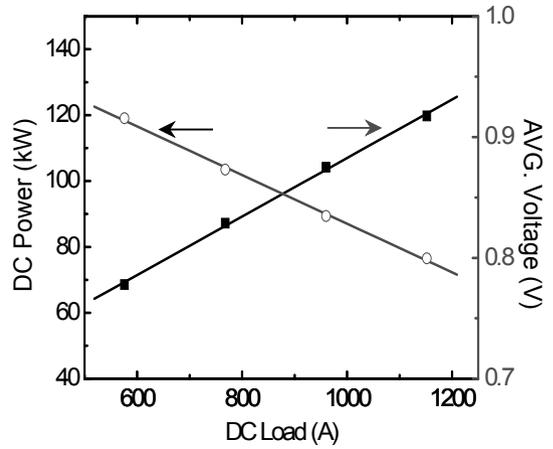


Fig. 6 DC power and average cell voltage according to DC load.

내고 있다. 전기 부하량이 증가함에 따라 평균 전압은 선형적으로 떨어지는 반면에 출력량은 선형적으로 증가하는 것을 보여준다. 그래프에서 볼 수 있듯이 평균 전압 0.8V를 기준으로 운전할 경우에 대략 120kW 출력을 생산할 수 있다. 그래프에서는 나타나 있지 않지만, MCFC 스택의 부하에 따른 최대 출력은 1200A 이상에서 나타난다.

그러나 MCFC 대용량 스택의 장기 운전에 있어서 기준은 평균 전압보다는 한계 온도가 기준이 된

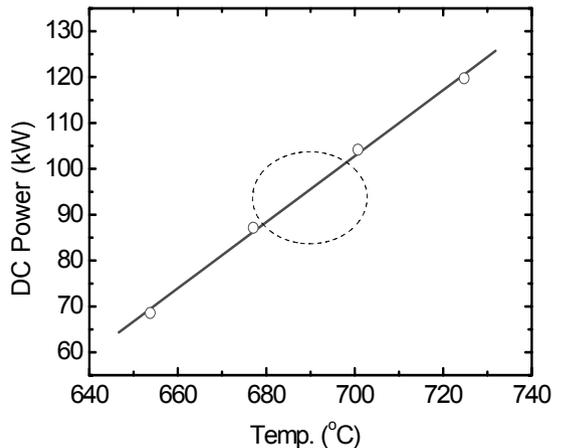


Fig. 7 DC power vs. cell temperature in hot zone.

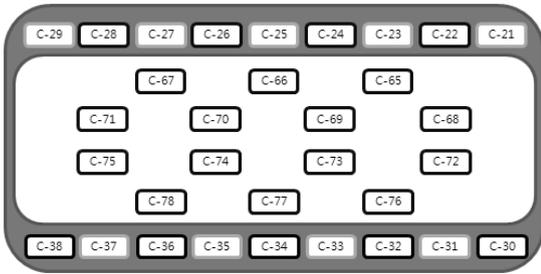


Fig. 8 Thermocouple positions in a cell for cell temperature measurement.

다. 기존 문헌에서 발표된 내용을 보면<sup>1)</sup>, 전지구성요소, 특히 전해질의 미세구조 변화나 열화속도를 가속시키는 한계 온도를 680°C~700°C 로 보고하고 있다.

Fig. 7은 스택 내의 고온부 온도에 따른 출력 상태를 나타낸다. 그래서 장기운전 조건은 그 한계 온도를 넘기지 않는 범위에서 대략 70kW~90kW의 DC 출력을 내는 것으로 나타난다. 이는 Fig. 6에서 대략 768A~960A 사이의 영역을 의미한다.

Fig. 8는 스택 내부 온도 측정용 분리판의 온도 센서 위치를 나타낸다. 그림에서 볼 수 있듯이 입·출구 매니폴드의 각각에 온도 센서가 위치하고, 또한 반응이 일어나는 셀 내부에 온도 센서가 위치한다.

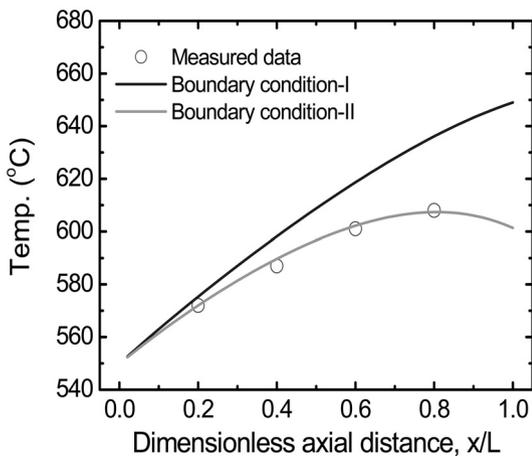


Fig. 9 Cell temperature profiles from the run results of 75 kW class MCFC stack and the simulated results with two boundary conditions.

Fig. 9는 75kW급 스택의 저부하 하에서 전지 내의 온도 profile<sup>6)</sup>과 각각 다른 두개의 경계 조건에서의 온도 profile을 나타내고 있다. Open circle은 온도 센서를 통해 측정된 데이터를 나타내고, 실선은 각각의 경계 조건에 따른 전산모사 결과를 나타낸다. 기존 스택 모델<sup>2,3)</sup>의 경계 조건은 전도 식을 사용하여 아래와 같이 나타낸다.

$$q_{x=0} = \frac{k}{d_w/2} (T_{x=0} - T_w)$$

$$q_{x=L} = \frac{k}{d_w/2} (T_{x=L} - T_w)$$

여기에서  $T_{x=0}$ 과  $T_{x=L}$ 은 각각 입구와 출구 젖음부(wet-seal) 온도를 의미하고,  $d_w$ 는 젖음부의 길이를 의미한다. Boundary-I & II 모두  $T_{x=0}$ 은 550°C로 설정되었다. 하지만  $T_{x=L}$ 에 있어서 boundary-I의 경우는 Koh et. al.이 세운 기존 모델, 즉 5kW급 스택 운전 결과를 토대로  $T_{x=L}$ 를 대략 650°C 정도로 경계 조건을 세웠고, boundary-II의 경우는 그림 8에 나타난 측정용 분리판의 출구 쪽 평균 온도인 600°C를 경계 조건으로 세웠다.

Fig. 9에서 살펴보면, 측정된 데이터와 기존 모델인 boundary-I의 온도 profile에서 큰 차이를 나타내는 것을 알 수 있다. 이는 기존 모델의 경계조건인 boundary-I이 현 스택에서는 맞지 않는 것으로 해석할 수 있다. 반면에 boundary-II의 600°C를 경계 조건을 세운 경우는 측정된 데이터와 매우 잘 일치함을 알 수 있다.

Fig. 10은 전기 부하에 따른 스택 내부의 온도 profiles을 나타낸다. 각각의 데이터는 저, 중, 고부하 하에서의 측정된 온도 데이터이고, 실선은 각각의 경계조건에 따른 전산 모사 결과를 나타낸다. 세가지의 경우 모두  $T_{x=0}$ 은 550°C로 일정하게 정해진 반면에,  $T_{x=L}$ 은 각각의 매니폴드의 평균 온도를 측정하여 경계조건을 설정하였다. 저부하에서  $T_{x=L}$ 은 600°C, 중부하에서  $T_{x=L}$ 은 630°C, 그리고 고부하에서  $T_{x=L}$ 은 660°C로 각각 설정하였다. Fig. 10에서 볼 수 있듯이 측정된 데이터와 전산 모사 결과가 매

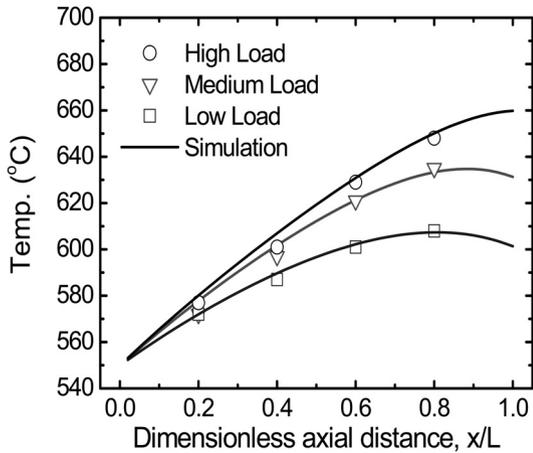


Fig. 10 Cell temperature profiles from the measured data and the simulated results with boundary-II under several electric loads.

우 잘 일치함을 알 수 있다.

위의 결과로부터 스택 내부 온도 분포에 관한 전산 모사 모델은 각 경계 조건에 의해 내부 온도 분포가 크게 다름을 알 수 있었다. 현 스택의 경우, 기구적으로 온도 센서 설치가 힘든 셀 내부의 온도를 직접 측정하지 않고, 설치가 용이한 매니폴드 내의 온도 측정에 의해 스택 내부의 온도를 추정할 수 있는 기반을 마련하였다. 하지만, 지금의 모델은 매니폴드 온도를 측정해야만 스택 내부의 온도를 추정할 수 있다. 이러한 이유 때문에 Fig. 7과 같은 결과를 도출하여 운전 조건을 예측하기에는 경계 조건, 즉 매니폴드의 온도를 모르기 때문에 정밀한 예측이 거의 불가능하다. 이 문제점을 해결하기 위해서는 셀 내부의 온도 변화에 따라 wet seal에서 대기로의 열손실을 고려할 수 있는 모델이 필요하다. 즉, 셀 내부의 온도가 wet seal에서 대기로의 열손실에 대한 변수가 되어 함께 계산되어야만 할 것으로 생각된다. 향후 이 부분에 대한 많은 연구가 필요할 것으로 생각된다.

#### 4. 결 론

MCFC 스택의 설계 및 운전에 있어서 스택 내의

온도 분포는 매우 중요한 변수 중 하나이다. 이러한 온도 분포를 예측하기 위해 많은 스택 전산 모사 모델이 발전되어 왔다.

본 연구에서는 75kW급 MCFC 스택 운전 결과를 이용하여 기존 모델을 검토하였고, 기존 모델과 측정 데이터의 차이가 존재하는 것을 알 수 있었다. 이 차이점에 의해 기존 모델의 경계 조건이 수정되었다. 수정된 모델의 경계 조건은 입·출구 매니폴드의 평균 온도를 측정하여 그 값을 경계 조건으로 설정하였다. 그 결과, 전산 모사 결과가 측정된 데이터와 매우 잘 일치함을 알 수 있었다. 위의 결과로부터 상대적으로 측정이 매우 용이한 매니폴드 내 온도 측정에 의해 스택 내부 온도를 추정할 수 있는 기반을 마련하였다.

#### 참 고 문 헌

- 1) J. H. Hirschenhofer, D. B. Stauffer, and R. R. Engleman, "Fuel Cells - A Handbook (Revision 3)", January 1994.
- 2) J. H. Koh, B. S. Kang, and H. C. Lim, "Analysis of temperature and pressure fields in molten carbonate fuel cell stacks", *AIChE J.* Vol. 47, No. 9, 2001, p. 1941.
- 3) J. H. Koh, B. S. Kang, and H. C. Lim, "Effect of various stack parameters on temperature rise in molten carbonate fuel cell stack operation", *J. Power Sources*, Vol. 91, 2000, p. 161.
- 4) J. Brouwer, F. Jabbari, E. M. Leal, T. Orr, "Analysis of a molten carbonate fuel cell: Numerical modeling and experimental validation", *J. Power Sources*, Vol. 158, 2006, p. 213.
- 5) Wilemski, G., "Simple porous electrode models for molten carbonate fuel cells", *J. Electrochem. Soc.*, Vol. 130, 1983, p. 117.
- 6) 강승원, 김범주, 김도형, 이정현, 김의환, 임희천, "75kW MCFC 스택 운전 결과", 한국수소 및 신에너지학회 논문집, Vol. 20, No. 3, 2009, p. 202.