

10kW급 건물용 고체산화물연료전지(SOFC) 시스템 모델을 이용한 운전조건 최적화 연구

이율호¹ · 양찬욱¹ · 양충모² · 박상현² · 박성진^{1†}

¹홍익대학교 기계공학과 동력 및 에너지 기술 연구실, ²포스코 에너지 연료전지연구소

Optimization of Operating Conditions for a 10 kW SOFC System

YULHO LEE¹, CHANUK YANG¹, CHOONGMO YANG², SANGHYUN PARK², SUNGJIN PARK^{1†}

¹Power & Energy Science Laboratory, Hong-ik Univ. 94, Wowsan-ro, Mapo-gu, Seoul, Korea

²POSCO ENERGY, #13-9 Junkcheon-ri, Hunghae_eup, Buk-gu, Pohang City, 791-941, Gyeongbuk, Korea

Abstract >> In this study, a solid oxide fuel cell (SOFC) system model including balance of plant (BOP) for building electric power generation is developed to study the effect of operating conditions on the system efficiency and power output. SOFC system modeled in this study consists of three heat-exchangers, an external reformer, burner, and two blowers. A detailed computational cell model including internal reforming reaction is developed for a planer SOFC stack which is operated at intermediate temperature (IT). The BOP models including an external reformer, heat-exchangers, a burner, blowers, pipes are developed to predict the gas temperature, pressure drops and flow rate at every component in the system. The SOFC stack model and BOP models are integrate to estimate the effect of operating parameters on the performance of the system. In this study, the design of experiment (DOE) is used to compare the effects of fuel flow rate, air flow rate, air temperature, current density, and recycle ratio of anode off gas on the system efficiency and power output.

Key words : Solid oxide fuel cell(SOFC, 고체산화물연료전지), Fuel cell system(연료전지 시스템), Numerical model(수치해석 모델), Optimization(최적화), Design of experiment(실험계획법)

Nomenclature

A	: surface area [m ²]	h_i	: reaction heat [J/mol]
c_p	: specific heat [J/Kg K]	J	: current density [A/m ²]
E^0	: open circuit voltage [V]	$J_{0,i}$: exchange current density [A/m ²]
F	: faraday's constant [96485 C/mol]	k	: reaction constant [mol/(m ³ ·s)]
h_{cell}	: height [m]	m	: mass flow [kg/s]
		n	: mol flow [mol/s]
		R	: gas constant [J/(K·mol)]
		r	: reaction rate [mol/(m ³ ·s)]
		T	: temperature [K]
		U	: coefficient of heat transfer
		p	: partial pressure

[†]Corresponding author : parksj@hongik.ac.kr

Received: 2015.11.26 in revised form: 2016.1.25 Accepted: 2016.2.28

Copyright © 2016 KHNES

V : voltage [V]
 x : mole fraction
 η : voltage loss

Subscripts

an : anode
 ca : cathode
 CHP : combined heat & power generation
 SR : steam reforming
 WGS : water gas shift
 LHV : low heat value
 EMF : electro motive force
 ohm : ohm loss
 act : active loss
 diff : diffusion loss

1. 서 론

세계의 에너지 소비량 증가로 인하여 발전시스템에 대한 수요가 꾸준히 늘고 있다. 하지만 원자력발전소는 안전성의 이유로 많은 나라가 건설계획을 축소하고 있고¹⁾, 화력발전소는 최종 에너지 발전 효율이 약 41%로 낮다. 버려지는 열을 사용해 에너지 효율을 높이고 소비량을 낮추기 위해서는 열병합 발전(CHP : combined heat & power generation) 시스템이 필요하다. 가정용이나 건물용 발전의 경우 버려지는 열을 온수로 사용할 수 있고 송전손실을 줄일 수 있어 높은 효율을 기대 할 수 있다. 1973년 석유파동 이후 북유럽국가를 포함한 많은 국가에서는 효율을 높이고 에너지 소비를 낮추기 위해 상업용 건물이나 아파트에서 열병합 발전 시스템을 사용하고 있다²⁻⁵⁾. 중대형 건물 안에서 운용 가능한 발전 시스템으로는 연료전지 시스템이 있다. 연료전지 시스템은 전력생산 발전 효율이 50%이고, 먼 거리에서의 전력 송수신으로 인한 송전손실이 없으며, 폐열 활용이 수요지

에서 직접 가능한 장점이 있다. 그리고 개별발전이 가능하기 때문에 건물의 에너지 수요량에 따라 유동적으로 발전할 수 있다.

연료전지의 종류로는 대표적으로 MCFC (Molten Carbonate Fuel Cell), PEMFC (Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell), SOFC (Solid Oxide Fuel Cell), PAFC (Phosphoric Acid Fuel Cell) 등이 있다. 이들 중 SOFC는 약 800°C에서 1100°C 사이에서 운전되는 연료전지로 고온에서 작동되기 때문에³⁾ 비귀금속계 금속을 사용할 수 있고 다양한 연료를 동일한 시스템에서 이용 할 수 있다. SOFC 시스템 효율은 고온의 배기가스를 온수로 활용하면 최대 95%까지 가능하다⁶⁾.

연료전지 시스템 운용에 있어서 최적의 시스템 구성과 운전조건은 높은 시스템 효율을 위해 필수적인 요소이다⁷⁾. 하지만 실험을 통해 다양한 시스템과 운전조건을 검증하기 위해서는 많은 자원과 시간이 소모된다. 따라서 신뢰성 있는 시뮬레이션을 통해 운전조건에 따른 반응을 예측하고 효율적인 시스템을 찾을 수 있다면 많은 시간과 비용을 절약할 수 있다. 지금까지 최적의 시스템을 개발하기 위해 다양한 수학적 모델을 이용한 연구가 있었다. Bove⁸⁾ 등은 SOFC 시스템 시뮬레이션을 위해 micro-detailed 스택 모델과 macro-black box 스택 모델을 시스템 모델에 적용해 두 모델이 시스템 모델에 있어서 얼마나 신뢰성을 가지는지 분석하였다. P. Lisbona⁷⁾ 등은 black box SOFC 스택 모델과 BOP 모델을 이용해 개질물, 재순환비율이 시스템 성능과 열효율에 어떠한 영향을 미치는지 분석하였다. A. Arsalis⁹⁾ 등은 PEMFC 시스템을 모델링해 초기 셀 온도, 셀 작동온도, 들어가는 수소 비율, S/C (steam to carbon ratio) 비율을 파라미터로 변화시키며 시스템의 효율을 비교하였다. 하지만 실험 결과와의 검증이 없어 시스템의 신뢰도가 떨어지고 실제 시스템과 다른 결과를 낼 수 있다. K.H. Lee와 R.K. Strand¹⁰⁾는 SOFC 열병합 발전 시스템 모

델을 이용해 추운 기후와 따뜻한 기후의 지역에서의 에너지 사용 데이터를 기반으로 다양한 운전조건에서 시스템의 효율과 성능이 어떻게 나타나는지 비교했다. 이와 같이 기존의 연구에도 시스템 모델을 통해 개질률, 셀 온도, 재순환비율, 수소비율, S/C 비율, 등 여러 가지 파라미터에 대해 시스템 성능과 효율에 어떠한 영향을 미치는지 분석을 진행했지만, 실제 시스템의 데이터와 모델을 검증하지 않았기 때문에 시스템 모델의 운전특성 및 성능에 대한 신뢰성을 확보하기 어려웠다.

본 연구에서는 SOFC 스택모델과 BOP모델을 포함한 시스템 통합 모델을 개발하였고, 개발중인 10 kW 급 건물용 SOFC 시스템의 시험결과를 토대로 이를 검증하였다. 이 모델을 이용하여 제어 가능한 6가지 운전조건에 대한 실험계획법을 통해 주효과, 상호작용을 파악하였다. 그리고 시스템이 최적의 효율과 성능을 내기 위해 어떠한 방향으로 파라미터를 제어해야 하는지 분석하였다. 운전조건 파라미터로는 연료, 공기의 입구온도와 연료, 공기의 유량, 음극 배기가스(off-gas) 재순환 비율, 스택의 전류밀도를 사용하였다.

2. 10 kW급 건물용 SOFC 시스템

본 연구에 사용된 10 kW급 건물용 SOFC 시스템을 Fig. 1에 나타내었다. 시스템은 SOFC 스택, 개질기, 3개의 열교환기(HX1, HX2, HX3), 버너, 블로워

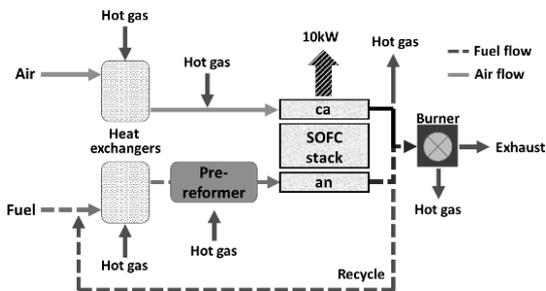


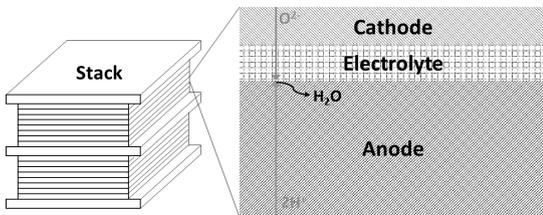
Fig. 1 SOFC system flow

로 구성되어 있다. 3개의 열교환기는 Fig. 1에서 Heat exchangers에 해당된다. 고온에서 작동하는 스택에서 나온 배기가스(off-gas)는 상온에서 들어오는 낮은 온도의 유체와 열교환을 통해 고온 부품의 온도를 유지하도록 했다. 시스템 전체 흐름을 보면, 먼저 연료의 흐름은 상온에서 들어온 연료가 재순환된 가스와 함께 섞이고 블로워를 거쳐 HX1에서 1차 열교환을 한다. 온도가 상승된 연료는 개질기에서 2차 열교환과 동시에 개질반응을 통해 연료에서 수소를 분리한다. 이후에 스택에서 나온 음극 배기가스(off-gas)와 HX2에서 3차 열교환을 통해 연료전지 운전에 적절한 온도까지 가열되고 스택으로 들어간다. 스택에서는 전기반응의 발열반응으로 인해 들어온 가스의 온도에서 약 50°C정도 상승한 반응된 가스가 스택에서 배출되게 된다. 스택에서 나온 고온의 배기가스(off-gas)는 열교환형 개질기와 HX1 열교환기를 거쳐 재순환 블로워와 버너로 나뉘게 된다. 두번째로 공기 쪽 흐름을 보면 상온의 공기가 블로워를 거쳐 HX3 열교환기로 들어가 버너후단의 가장 뜨거운 가스와 열교환을 한 후 스택에 공급된다. 스택에서 나온 양극 배기가스(off-gas)는 HX2 열교환기로 들어가 아직 온도가 충분히 오르지 못한 연료를 승온시키고 버너로 들어가게 된다. 버너에서 모인 수소가 포함된 음극 배기가스(off-gas)와 산소가 포함된 양극 배기가스(off-gas)는 완전 연소되어 HX3 열교환기로 들어가 상온에서 들어오는 공기의 온도를 높혀준다. 정격운전상태에서 시스템 효율은 50%이고 음극 배기가스(off-gas) 재순환비율은 66%이다. 사전 개질률은 50~60%이고 공기유량은 102.5 kg/hr, 연료유량은 1.483 kg/hr이다. 전체적인 시스템 정격운전 조건 및 사양은 Table 1에 정리되어있다. 스택의 출력은 약 12 kW이고 블로워에서 소비전력이 약 740 W가 되어 시스템 출력은 11.3 kW가 된다.

시스템에 사용된 스택은 10 kW급으로, 중대형 건물에 적합한 용량을 기준으로 선정되었다. 셀은 Fig. 2와 같이 판형이고 음극지지형이다. 셀의 크기는 19 cm ×

Table 1 Specifications of 10 kW SOFC system

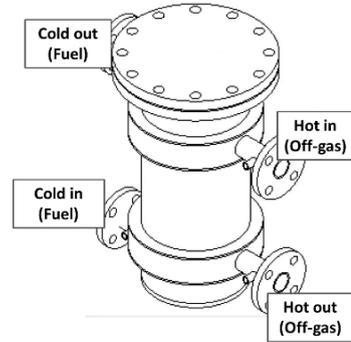
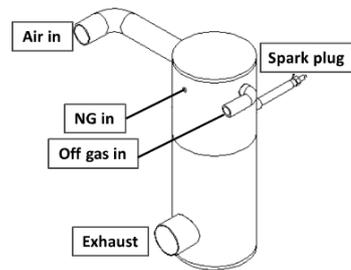
System specification	
Stack power	12 kW
System net power	11.3 kW
Blower power	740 W
System efficiency	50%
Pre-reformed ratio	40~50%
Recirculation ratio	66%
Air temperature	15°C
Fuel temperature	15°C
Air flow rate	102.5 kg/hr
Fuel flow rate	1.483 kg/hr
Cell size	19 cm × 19 cm
Number of cell	160 ea
Current density	3000 A/m ²

**Fig. 2** Schematic of anode supported planer solid oxide fuel cell

19 cm이고 스택 셀의 개수는 160개이다. 정격에서 스택의 출력은 약 12 kW이고 공기이용률은 20%, 부하는 3000 A/m²이다.

개질기는 열교환형 개질기로 스택으로 들어가는 연료를 수소로 개질시키고 스택에서의 개질의 흡열 반응으로 인한 부하를 덜기 위해 고온의 배기가스(off-gas)와 열교환할 수 있는 형태로 개발되었다. 온도에 따라 40%~60%의 개질률을 갖는다. 개질기로 들어간 연료는 배기가스(off-gas)의 열을 전달받아 온도가 상승되는 동시에 니켈촉매를 통과하며 개질된다. Fig. 3에서 볼 수 있듯이 열교환기는 shell & tube 형식이고 배기가스(off-gas)와 연료는 향류로 열교환이 된다.

스택의 고온을 유지하고 스택에서 나온 양극과 음

**Fig. 3** Schematic of heat exchanging pre-reformer**Fig. 4** Schematic of Burner

극의 배기가스(off-gas) 열과 버너에서 연소된 가스의 열을 활용하기 위해 3개의 판형 열교환기가 사용되었다. 버너에서 연소된 가스를 이용해 공기를 가열하고 스택에서 나온 배기가스(off-gas)를 이용해 개질전의 연료와 개질기이후에 스택에 들어갈 수소를 포함한 개질된 연료를 가열한다.

버너는 스택에서 반응하고 남은 연료를 태우고 그 뜨거운 가스를 열교환기로 보낸다. 버너에는 양극에서 반응하고 남은 공기와 스택에서 반응하고 남은 수소가 들어가게 된다. 정격운전의 경우 버너에서 연료는 완전연소되어 약 800°C에서 열교환기로 들어가 상온의 공기와 열교환한 후 최종적으로 약 170°C의 배기가스로 배출 된다. 스택에서 배출된 배기가스(off-gas)는 버너로 들어가기 이전에 약 66%를 연료관으로 재순환시켜 연료이용률을 높이고 시스템의 온도를 유지시킨다. Fig. 4는 버너의 모습을 나타낸다.

시스템의 기체를 순환시키기 위해 공기와 연료에

각각 하나씩의 블로워를 사용한다. 정격 운전 조건에서 공기 블로워는 600 W를 소모하고 연료 재순환용 블로워는 140 W를 소모해 총 약 740 W를 블로워에서 소모한다.

2.1 SOFC 스택 모델

스택은 시스템에서 가장 중요한 부분으로 시스템의 출력과 성능, 효율을 결정한다. 스택모델은 전하보존법칙을 통해 출력을 결정하고 화학반응과 에너지 보존법칙을 통해 출구유량과 출구온도를 결정한다.

2.1.1 전하보존

셀의 전압은 손실을 제외한 Nernst 전압으로 결정된다. Nernst 전압은 Gibbs 자유에너지와 온도, 분자의 분압에 의해 결정되고 손실로는 저항손실, 반응손실, 확산손실이 있다.

$$V_{cell} = V_{Nernst} - (\eta_{ohm} + \eta_{act} + \eta_{diff}) \quad (1)$$

여기서 V_{cell} 은 셀 하나의 출력전압, V_{Nernst} 는 Nernst 전압, η_{ohm} 은 저항손실, η_{act} 은 반응손실, η_{diff} 은 확산손실을 뜻한다.

Nernst 전압은 개회로 전압과 셀 안의 분자의 분압으로 결정되는데 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$V_{Nernst} = E^0 + \frac{RT}{2F} \ln \left(\frac{p_{H_2} (p_{O_2})^{0.5}}{p_{H_2O} p_{atm}^{0.5}} \right) \quad (2)$$

여기서 E^0 는 개회로 전압(open circuit voltage), p_i 는 분압을 뜻한다.

E^0 는 개회로전압으로, 온도에 따른 Gibbs 자유에너지를 통해 알 수 있다. 수소 연료전지의 상세한 기전력(EMF)은 Table 2에서 나타내는 값을 참고하였

Table 2 Δg_f , maximum EMF for hydrogen fuel cells¹¹⁾

Temp. (°C)	Δg_f (kJ/mole)	Max EMF
200	-220.4	1.14V
400	-210.3	1.09V
600	-199.6	1.04V
800	-188.6	0.98V
1000	-177.4	0.92V

다¹¹⁾. SOFC는 고온에서 운전되기 때문에 저위발열량만 고려하였다.

식 (1)에서의 세가지 손실에는 저항손실, 반응손실, 확산손실이 있다. 저항손실은 전기저항에 의해 전하가 흐를 때의 손실로 식 (3)과 같이 표현할 수 있다.

$$\eta_{ohm} = J(h_{cell} R_{cell}) \quad (3)$$

J 는 전류밀도, h_{cell} 은 셀의 두께, R_{cell} 은 셀의 전압을 뜻한다.

반응손실은 화학반응에서 활성화에너지와 반응열에 대한 손실로 식 (4)와 같이 Butler-Volmer 방정식을 이용해 표현할 수 있다.

$$\eta_{act} = \frac{RT}{F} \sinh^{-1} \left(\frac{J}{2j_{0,an}} \right) + \frac{RT}{F} \sinh^{-1} \left(\frac{J}{2j_{0,ca}} \right) \quad (4)$$

확산손실은 셀 안에서 분자의 확산에 의한 힘의 손실로 간단하게 식 (5)와 같이 표현할 수 있다.

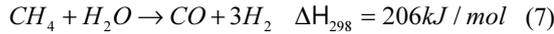
$$\eta_{diff,an} = \frac{RT}{2F} \ln \left(\frac{x_{H_2,b} x_{H_2O,TPB}}{x_{H_2O,b} x_{H_2,TPB}} \right),$$

$$\eta_{diff,ca} = \frac{RT}{4F} \ln \left(\frac{x_{O_2,b}}{x_{O_2,TPB}} \right) \quad (5)$$

여기서 j_0 는 교환전류밀도를 뜻하고 x 는 분율을 뜻한다.

2.1.2 화학반응

연료전지 안에서의 화학반응은 크게 두가지가 있다. 전기생성반응은 전자를 이동시키고 수소와 산소가 결합해 식 (6)과 같이 발열반응을 하고, 수증기 개질(steam reforming)반응은 수증기와 메탄 등의 연료가 식 (7)과 같이 개질되며 흡열반응을 한다. 개질반응으로 생성된 일산화탄소는 식 (8)과 같이 수성 가스 전환(water gas shift) 반응을 통해 일부 이산화탄소를 생성한다.



개질 반응의 반응속도는 반응속도 상수와 반응물, 생성물의 분압에 의해 결정되는데 이에 관련된 식은 W. Legnert¹²⁾를 참고하였다. 식 (9)는 수증기 개질 반응속도 식이고, 식 (10)은 수성 가스 전환 반응속도 식을 나타낸다.

$$r_{SR} = k_{SR}^+ p_{CH_4} p_{H_2O} - k_{SR}^- p_{CO} (p_{H_2})^3 \quad (9)$$

$$r_{WGS} = k_{WGS}^+ p_{CO} p_{H_2O} - k_{WGS}^- p_{CO_2} p_{H_2} \quad (10)$$

반응속도는 반응물이 생성물로 되려는 속도에서 생성물이 반응물로 되려는 속도를 뺀 값이 최종 반응 속도가 된다. k는 각 반응의 반응상수이고 온도와 촉매 특성에 의해 결정된다. p는 부분분압을 뜻한다.

2.1.3 에너지보존

식 (6), 식 (7)과 같이 연료전지 안에서는 흡열반응과 발열반응이 동시에 일어난다. 스택 안에서 반응이

일어나는 구간에 따라 온도분포가 스택 성능에 영향을 주게 된다. 하지만 본 연구에서는 스택에서의 온도분포는 고려하지 않고 입구에서의 기체온도와 유량, 출구에서의 기체 온도와 유량, 그리고 스택의 평균온도만 고려한다. 식 (11)과 같이 유량과 비열, 온도를 통해 전체 스택에 대한 에너지보존 방정식을 나타낼 수 있다. 유입되는 기체의 엔탈피, 배출되는 기체의 엔탈피, 전기화학반응으로 인한 발열, 흡열 엔탈피, 그리고 스택 외부로의 열손실을 통해 스택의 온도와 스택에서 나가는 기체의 온도를 산출한다. 스택의 출구에서 음극과 양극의 기체온도는 같다고 가정한다.

$$\begin{aligned} & (\dot{n}_{in} c_{p,in}(T_{in}) - \dot{n}_{out} c_{p,out}(T_{out})) \\ & - \sum \dot{n}_i h_i(T) = UA_s (T_{mean} - T_{inf}) \end{aligned} \quad (11)$$

U는 스택의 총괄 열교환계수이고 h_i 는 각 화학반응열, c_p 는 비열, A는 스택의 표면적, n은 질량유량을 나타낸다.

2.1.4 스택모델의 수치적 해법 과정

모델은 Fig. 5의 흐름도를 따라 해를 찾게 되는데,

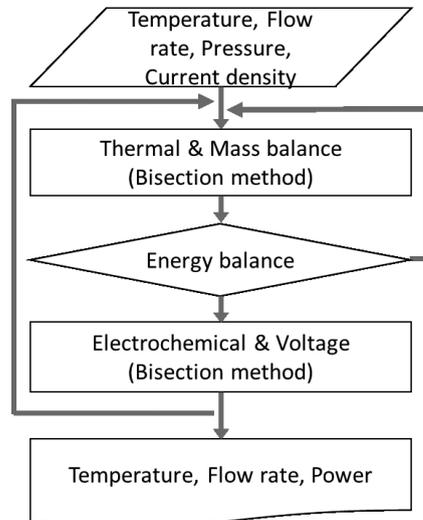


Fig. 5 Flow chart for iterative solution procedure of SOFC stack model

입력된 온도, 유량, 압력, 전류밀도를 바탕으로 열전달, 질량보존 방정식을 계산한 후 이분법을 통해 에너지보존, 전기화학반응을 계산하고 결과로서 전압, 출력을 내놓는다.

2.1.5 스택 모델 검증

스택모델은 스택의 단품실험 결과와의 비교를 통해 검증하였다. Fig. 6과 같이 스택 입구와 출구에서의 온도, 각 분자의 몰유량을 비교하였다. 반응물인 수소와 생성물인 이산화탄소의 몰유량과 온도를 입구와 출구에서 비교하였다. 비교결과 출구에서 CO2 몰유량은 오차 0.3%, 온도 1% 이내로 나타났다. 또한, CO는 1.8%, H2는 0.05%, H2O는 0.09%의 오차를 보인다.

스택의 I-V커브는 Fig. 7에 나타내었다. I-V커브의

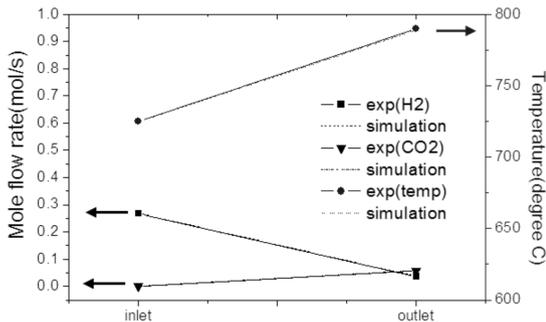


Fig. 6 Validation of SOFC stack model (mole flow rate and temperature in inlet and outlet)

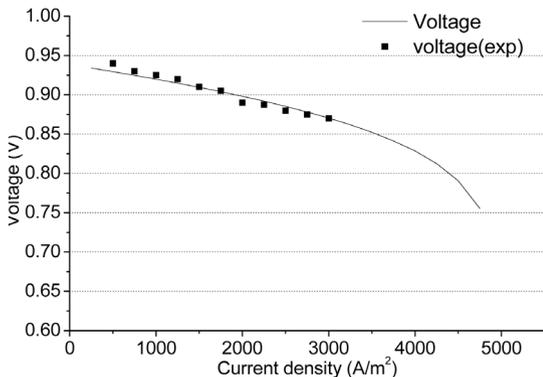


Fig. 7 SOFC cell I-V curve

실험조건은 셀의 개수가 96개인 스택을 약 700°C로 정했으며, 전류밀도에 따른 평균 셀 전압을 출력하여 스택 모델과의 결과를 비교하였다. 전류밀도가 낮은 부분에서는 미세한 오차를 보이지만 정격운전 범위인 3000 A/m² 부근에서는 정확히 일치하였다.

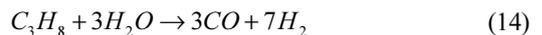
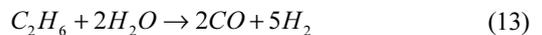
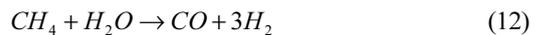
2.2 사전 개질기 모델(Pre-reformer)

개질기는 연료의 일부를 수소로 바꿔주는 역할을 하는 장치로 스택에서의 과도한 개질의 흡열반응으로 인한 스택온도 불균형을 막고 안정적인 운전을 돕는다. 개질기에 들어가는 연료는 천연가스 성분을 기준으로 하였다. 도시가스의 주된 성분으로는 메탄, 프로판, 에탄이 있다.

2.2.1 화학반응

개질기의 온도는 개질물에 가장 많은 영향을 주는 인자이다. 개질기의 온도가 높으면 충분한 양이 수소로 개질되고 스택에서의 개질로 인한 부하를 덜어준다. 본 연구에 사용된 모델은 열교환형 개질기로 아직 온도가 오르지 않은 연료를 고온의 배기가스(off-gas)와 열교환을 통해 충분한 온도를 제공하고, 개질과정에서 흡열되는 열로 인해 스택에 들어가는 기체의 온도가 낮아 지지 않도록 한다.

개질기로 들어간 세 종류의 연료는 약 50%가 개질되고 출력되는 기체로는 수소, 물, 일산화탄소, 메탄이 주가 된다. 프로판과 에탄은 비율이 매우 적기 때문에 개질기 안에서 모두 개질된다. 개질 반응은 다음과 같이 메탄, 프로판, 에탄 개질반응이 있고 이에 대한 반응식을 식 (12), (13), (14)에 나타내었다.



일산화탄소는 각 분자의 농도와 온도에 따라 일부 이산화탄소를 생성하는 식 (8)과 같은 수성 가스 전환(WGS) 반응을 한다.

개질기에서의 화학반응은 평형상수를 통해 반응량을 결정하였다. 개질기에서 개질반응은 정반응에 비해 역반응이 매우 적기 때문에 평형상수로써 정반응만을 고려하였다¹³⁾.

2.2.2 에너지보존

열교환형 개질기이기 때문에 반응열 뿐만 아니라 기체와의 열교환까지 고려했다. 열교환은 shell & tube 방식으로 부피를 많이 차지하지만 효율이 좋은 방식이 사용되었다. 유입되는 기체의 열량, 나가는 열량, 반응열과 열교환량에 의해 나가는 기체의 온도를 결정하게 된다.

$$\sum_i \int_{T_{in}}^{298.15} \dot{m}_i C_{p,i}(T) dT + \sum_j \dot{m}_j \Delta H_{298.15}^o + \sum_k \int_{298.15}^{T_{out}} \dot{m}_k C_{p,k}(T) dT = UA\Delta T \quad (15)$$

위에서 \dot{m}_i 는 유량을 뜻하고 U는 총괄 열교환계수이다.

2.2.3 개질기 모델의 수치적 해법 과정

개질기 모델은 입력된 온도, 유량, 압력에 따른 열교환량, 반응속도를 결정하게 되고 이분법을 통해 에너지 보존을 만족한 후 온도와 유량을 계산하게 된다. 계산과정은 Fig. 8과 같이 나타낼 수 있다.

2.2.4 개질기 모델 검증

개질기 모델은 4가지 운전조건에 대한 단품실험 결과를 통해 검증하였다. 실험결과에서 4가지 운전조건은 연료와 공기의 유량은 모두 동일하고 연료의 출구온도를 480°C, 500°C, 530°C, 550°C으로 설정한 실험

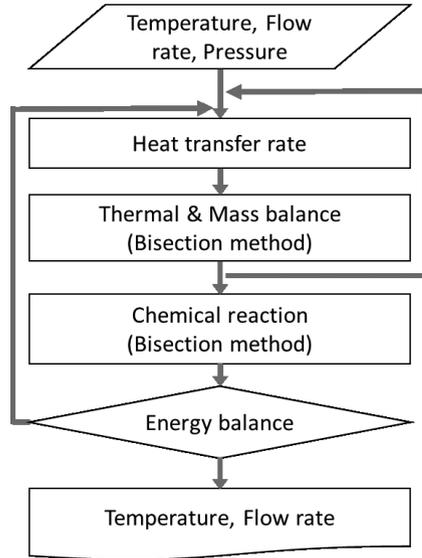


Fig. 8 Flow chart for iterative solution procedure of pre-reformer

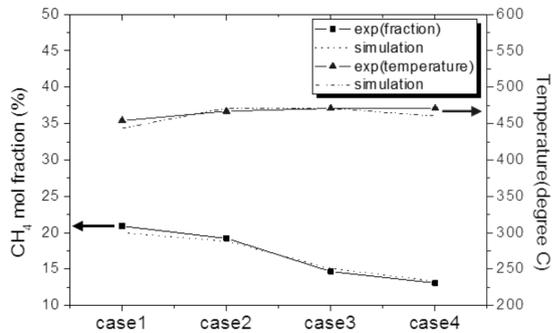


Fig. 9 Validation of pre-reformer model (outlet CH₄ mol fraction and inlet temperature in 4 different cases)

험결과이다. 모델과의 검증 결과 Fig. 9에 나타난 바와 같이, 가장 낮은 온도인 연료가스 출구 온도 480°C인 case1에서 1.44%의 입구온도 오차를 보이고 출구에서의 메탄 분율은 가장 낮은 온도에서 4.38%의 오차를 보인다.

2.3 열교환기 모델

열교환기는 스택에서 나오는 고온의 기체를 이용해 상온의 공기와 연료의 온도를 높여준다. 시스템에서는 Fig. 10과 같은 판형 열교환기를 사용한다. 판

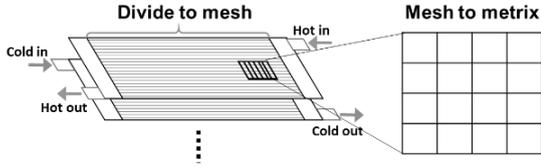


Fig. 10 Modeling approach of heat exchanger

형 열교환기는 공간활용성이 높고 모듈화에 용이하다. 본 시스템은 3개의 열교환기를 사용하는데 HX1은 음극 배기가스(off-gas)를 이용해 상온에서 들어온 연료와 재순환된 가스를 가열한다. HX2는 양극 배기가스(off-gas)를 이용해 개질기에서 개질된 연료를 스택에 들어가기전에 운전온도로 승온시킨다. HX3는 버너에서 연소된 기체와 상온의 공기가 열교환되어 공기의 온도를 스택에서 반응할 수 있는 온도로 상승시킨다. 열교환기의 모델개발은 상단, 하단과 나머지는 중간부분으로 나누어 약 200개의 격자를 3차원 행렬화해 각 격자에서의 열전달과 에너지보존 방정식을 통해 열교환기 모델을 개발하였다.

2.3.1 열전달

열교환기의 각 격자에 대해 들어가고 나가는 유체의 열용량과 근접한 벽을 통한 온도가 다른 유체에 의한 열전도에 의한 각 격자를 적분하고 입구유량과 온도에 의해 출구의 온도를 결정한다. 격자 주위로 전달된 열교환량은 식 (16)과 같이 들어온 유체의 열량과 나간 유체의 열량을 통해 구할 수 있다.

$$\int_{T_{in}}^{298.15} \dot{m}C_{p,in}(T)dT + \int_{298.15}^{T_{out}} \dot{m}C_{p,out}(T)dT = UA_{mesh} \Delta T \quad (16)$$

여기서 \dot{m} 은 질량유량, C_p 는 비열, U 는 총괄열전달효율, A 는 열전달면적이다.

2.3.2 열교환기 모델 검증

시스템 정격운전상태에서 요구하는 온도와 유량

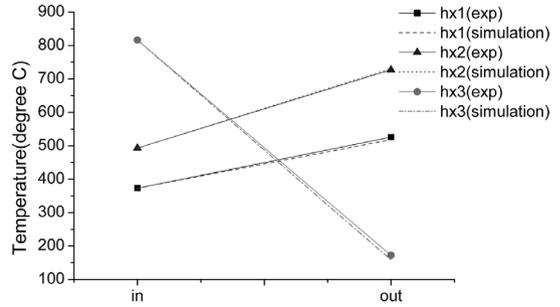


Fig. 11 Validation of heat exchanger model (outlet temperatures)

을 만족하도록 제작된 세 개의 열교환기의 실험 결과와 모델의 시뮬레이션 결과를 Fig. 11에서 각각의 열교환기의 입구와 출구에서의 온도결과를 비교 하였다. 비교결과 HX1은 출구에서 1% 온도 오차, HX2는 출구에서 0.5% 온도 오차를 보이고 HX3의 연소 배출 가스의 온도 오차는 8%를 나타낸다.

2.4 버너 모델

버너는 스택에서 반응하고 남은 음극과 양극의 배기가스(off-gas)를 완전연소시키고 연소된 뜨거운 가스를 열교환기에 보낸다. 버너의 뜨거운 기체로 공기의 온도를 올리기 때문에 스택에서의 연료이용률이 높으면 버너 연료량이 작어져 스택으로 들어가는 공기의 온도가 떨어지고 또한 음극의 재순환률이 높을수록 버너에 들어가는 연료의 양이 적어진다. 버너 모델은 화학반응식과 에너지보존 방정식을 이용해 개발하였고 버너 단품 실험결과를 이용해 검증하였다.

2.4.1 화학반응

버너에서는 스택에서 반응하고 남은 수소, 일산화탄소와 공기가 만나 연소된다. 식 (17)은 수소 연소 반응식이고 식 (18)은 일산화탄소 연소반응식이다.





2.4.2 에너지 보존

버너에서의 에너지 보존은 개질기와 같다. 연소열에 의한 발열과 외부로의 열손실에 의해 출구 기체의 온도가 결정된다.

$$\sum_i \int_{T_{in}}^{298.15} \dot{m}_i C_{p,i}(T) dT + \sum_j \dot{m}_j \Delta H_{298.15}^o + \sum_k \int_{298.15}^{T_{out}} \dot{m}_k C_{p,k}(T) dT = \dot{Q} \quad (19)$$

위에서 Q는 열손실을 뜻한다.

2.4.3 버너모델 검증

버너의 실험결과를 토대로 버너를 검증하였다. 출구온도 300°C, 350°C, 400°C, 450°C, 500°C, 550°C, 600°C, 650°C의 8가지 경우에 대하여 Fig. 12와 같이 실험과 모델을 비교하였다. 비교결과 출구 온도 오차는 1.8%이내로 나타났다.

2.5.1 블로워 모델

블로워는 공기와 연료를 시스템에 공급하기 위한 장치로 연료 재순환 블로워 140 W, 공기블로워 약 600 W를 소비한다. 블로워의 소비전력은 시스템의 압

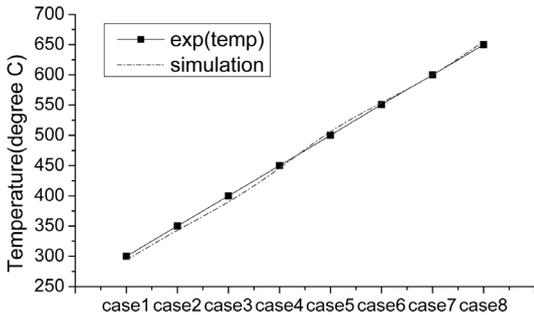


Fig. 12 Validation of burner model (burner outlet temperature)

력강하에 따라 부하가 걸리는 압력과 스택 출력에 필요한 유량을 흘리면서 소비전력이 결정되게 된다.

블로워에서 출구온도는 식 (20)을 통해 결정된다.

$$\Delta T = \frac{T_{in}}{\eta_c} \left\{ \left(\frac{P_{out}}{P_{in}} \right)^{\frac{\gamma_i - 1}{\gamma_i}} - 1 \right\} \quad (20)$$

여기서 γ_i 는 기체의 비열비, η_c 는 등엔트로피 효율이다.

2.6 시스템 통합 모델 개발

시스템 모델은 각각의 모델을 차례로 연결해 유체의 온도, 각 분자의 유량, 압력을 계산하도록 구성되어 있다. 정적모델이기 때문에 입력 데이터에 대한 최종 수렴결과를 계산한다. 각각의 모델 사이에는 배관에 의한 열손실을 고려하였다. Matlab-Simulink를 사용해 개발된 10 kW SOFC 시스템 정적 모델은 Fig. 13과 같다.

3. 시스템 운전 조건 최적화

3.1 운전조건 최적화를 위한 실험 설계

시스템 운전조건은 설계 목표 데이터를 기준으로

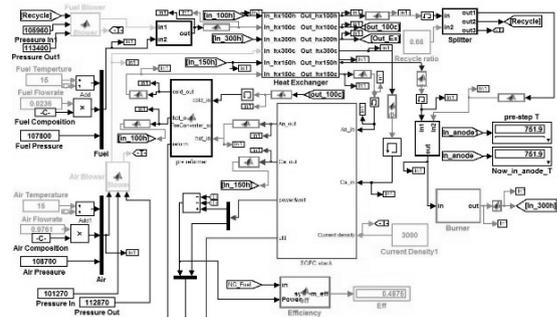


Fig. 13 10 kW SOFC system model developed in the environment of MATLAB Simulink

Table 3 Operating parameter level variation for system simulation

Parameter	Center	Simulation level
Fuel temperature	15°C	5°C 25°C
Air temperature	15°C	5°C 25°C
Fuel flow rate	1.483 kg/hr	90% 110%
Air flow rate	102.5 kg/hr	90% 110%
Recirculation ratio	0.66	0.60 0.72
Current density	3000 A/m ²	2700 A/m ² 3300 A/m ²

파라미터 해석을 진행하였다. 10 kW급 건물용 SOFC 연료전지의 성능조건이 시스템효율 50%, 스택연료 이용률 60%, 공기이용률 20%, 열손실 15%의 목표를 가진 상용 화학 공정 해석프로그램(Aspen Plus)의 데이터를 기준으로 6가지 입력조건에 대한 수준을 지정하였다. 6가지 입력조건에 대한 2가지 상하 데이터 시뮬레이션으로 6 × 2 요인설계를 하였고 파라미터와 수준은 Table 3에 정리되어 있다. 설계는 부분 요인설계로 완전요인설계의 1/2인 32가지 설계에 대한 시뮬레이션을 진행하였다. 효과도를 통해 중요 성능과 출력에 대해 주효과 인자들을 파악하고 각각의 주효과가 출력과 효율에 대해 어떠한 영향을 미치는지 해석해 보았다.

3.2 시뮬레이션 결과 및 파라미터 주효과

시스템에서 중요한 파라미터가 무엇인지, 서로 상호 작용을 가지는 파라미터가 있는지 파악하였다. Fig. 14의 결과를 보면 시스템 출력에 대해 가장 많은 영향을 미치는 요인은 연료유량, 전류밀도, 재순환비율, 공기유량 순으로 주효과를 보인다.

발전 시스템은 적은 연료로 최대한 많은 에너지를 생산하는 것이 목표이다. 본 논문에서 시스템 효율은 전기에너지로 생산하는 출력과 들어가는 연료의 열

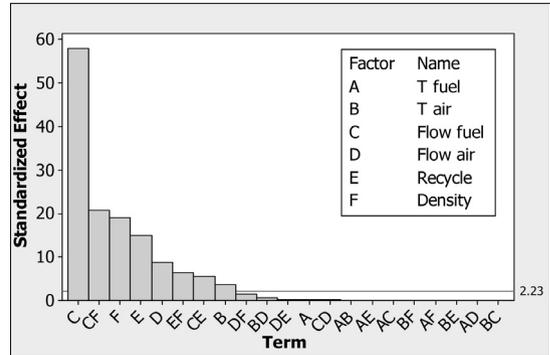


Fig. 14 Pareto chart of the standardized effects on power

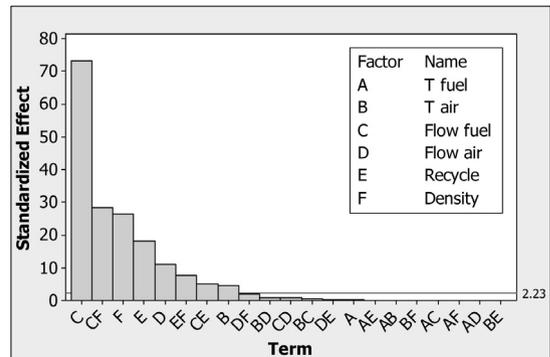


Fig. 15 Pareto chart of the standardized effects on system efficiency

량의 비로 정의하였다. Fig. 15의 결과를 통해 시스템의 효율에 있어서 영향이 큰 파라미터를 알 수 있는데 연료유량의 영향이 가장 크고 그 다음으로는 연료유량과 전류밀도의 복합요인, 전류밀도, 재순환율이 있다. 이러한 영향력 있는 파라미터를 통해 시스템에서 정확히 어떠한 영향을 보이는지 각각을 분석해 보았다.

Fig. 16을 보면 연료유량이 증가함에 따라 전압이 상승하고 출력도 증가했지만 효율은 감소하는 것을 알 수 있다.

연료유량이 많을수록 스택내부에서의 개질반응 증가로 인해 Fig. 17에서 볼 수 있듯이 온도가 낮아져 OCV가 높아지기 때문에 전압이 상승하고 출력이 증가한다. 하지만 출력에 비해 들어간 연료가 많기 때문에 시스템 효율은 감소한다.

Fig. 18에서는 연료유량과 전류밀도를 동시에 변화시켜 이에 따른 출력과 전압, 효율을 그래프로 나타내었다.

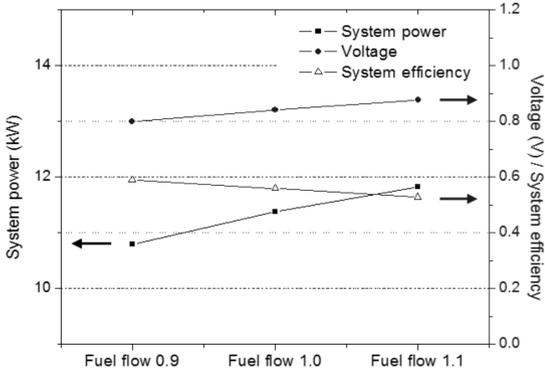


Fig. 16 Effect of fuel flow rate (0.9, 1.0, 1.1) on power, voltage, system efficiency by

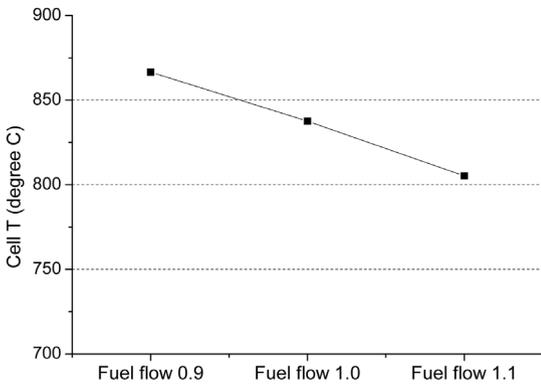


Fig. 17 Effect of fuel flow rate (0.9, 1.0, 1.1) on cell temperature

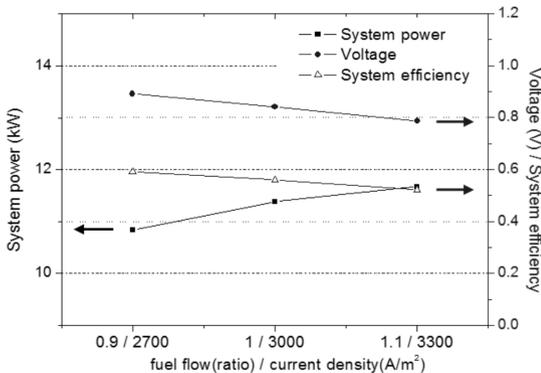


Fig. 18 Effect of fuel flow rate (0.9, 1.0, 1.1) and current density (2700 A/m², 3000 A/m², 3300 A/m²) on power, voltage, system efficiency

타내었다. 즉, 같은 연료이용률에서 부하를 높일수록 출력은 높아지지만 시스템 효율은 낮아지는 것을 확인할 수 있다.

Fig. 19에서 일정한 연료이용률 조건에서 재순환 비율 60%, 66%, 72%에 따른 출력, 전압, 시스템 효율 결과를 보여주는데 재순환량이 증가함에 따라 전압과 출력은 감소하고 효율은 증가한다. 재순환율이 높을수록 시스템에 넣어야 할 연료의 양이 감소해 효율은 높아진다.

Fig. 20에서 볼 수 있듯이 재순환율이 증가할수록 스택의 온도가 높아지기 때문에 전압이 감소하고 출력이 감소하게 된다.

시스템 효율에 있어서 중요한 파라미터는 Fig. 15

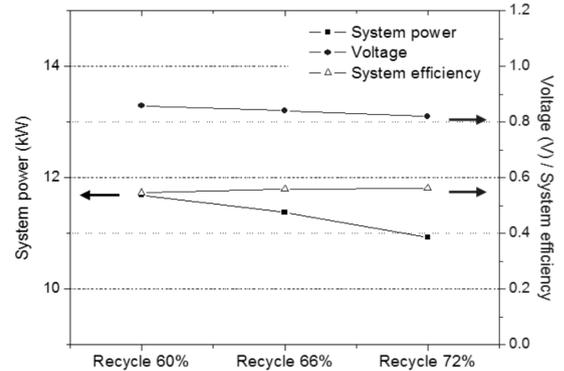


Fig. 19 Effect of anode recycle ratio (60%, 66%, 72%) on power, voltage, system efficiency (fuel utilization = 48%)

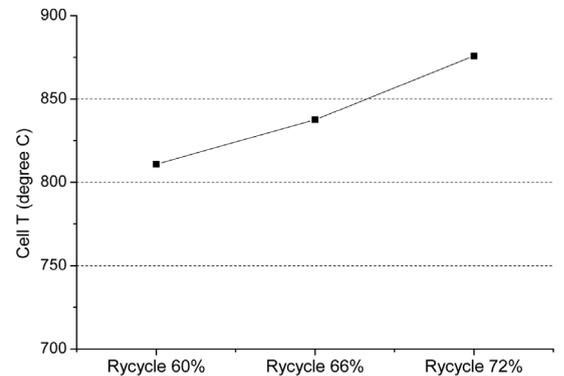


Fig. 20 Effect of anode recycle ratio (60%, 66%, 72%) on stack temperature

와 같이 연료유량, 전류밀도, 재순환비율, 공기유량으로 나타났다. 각각의 파라미터에 대한 영향은 Fig. 16~19와 같이 나타났다. 이들의 결과에 따르면 시스템 효율을 높이기 위해선 연료유량을 낮춰 연료이용률을 높이고 재순환을 증가시키야 한다. 하지만 이에 대한 한계점이 존재한다. 연료유량을 줄이고 재순환율을 높이면 Fig. 17, 20과 같이 셀 온도가 증가하는데 이때 Fig. 21과 같이 음극과 양극의 온도 차이가 커지게 된다. 스택에서의 온도 불균형은 셀의 균열 가능성을 높이기 때문에 음극과 양극의 온도 차이를 작게 해야 한다¹⁴⁾. Fig. 21에서 기준 운전조건인 normal 조건에서의 음극과 양극의 온도차이는 30°C이지만 연료유량을 감소시킨 Fuel flow 0.9 조건에서의 온도차이

는 113°C, 재순환율을 증가시킨 Recycle 72% 조건에서의 온도차이는 62°C로 모두 normal 조건의 온도차보다 크게 증가한다.

Fig. 22는 양극 기준의 입구와 출구의 온도 차이를 나타낸 것이다. 기준 운전조건에서는 104°C의 입구와 출구의 온도차이가 나는데 연료유량을 감소시킨 Fuel flow 0.9 조건에서의 입구와 출구의 온도차이는 193°C, 재순환율을 증가시킨 Recycle 72% 조건에서의 온도차이는 159°C로 기준보다 더 큰 온도 차이가 난다.

이러한 온도 불균형은 셀의 수명을 단축시키고 장기적으로 셀의 출력을 감소시키는 영향을 끼칠 수 있다.

4. 결 론

본 논문에서는 10 kW급 건물용 SOFC 스택과 BOP 모델을 개발하였고 각각의 단품을 시험결과와 검증하였다. 검증된 모델을 통합해 SOFC 시스템 모델을 개발하고 이를 실험계획법을 통해 주요과를 파악했다. 또한 시스템 모델에 있어서 각각의 파라미터가 어떠한 영향을 미치는지 분석하고 이를 토대로 시스템 효율과 성능을 높이기 위해 시스템 운전조건에 대한 분석 연구를 하였다. 분석 결과 다음과 같은 결과를 얻었다.

- 1) 시스템의 출력과 효율에 큰 영향을 미치는 파라미터로는 연료유량, 전류밀도, 재순환율으로 나타났다.
- 2) 연료유량은 적게 넣을수록 시스템 효율은 좋아지지만 스택의 온도가 너무 높아질 수 있다. 반대로 많이 넣으면 시스템 효율이 감소하고 스택의 온도가 낮아진다.
- 3) 전류밀도를 높이면 출력이 증가하지만 시스템 효율이 감소한다. 스택의 온도는 증가한다.
- 4) 재순환율은 높을수록 시스템 효율은 증가하지만

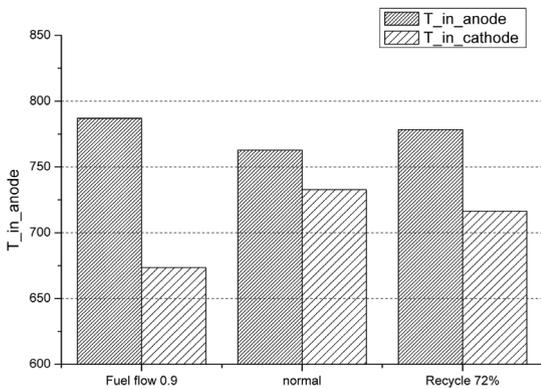


Fig. 21 Comparison of stack inlet temperatures of anode & cathode channel

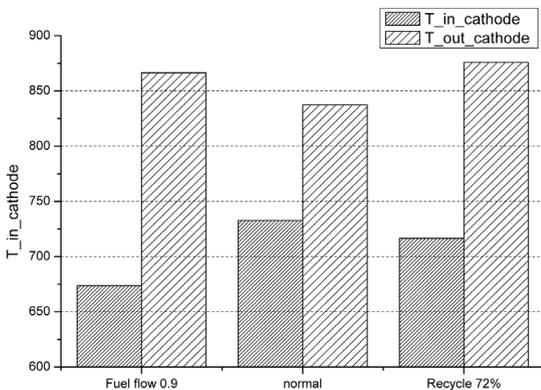


Fig. 22 Comparison of stack inlet & outlet temperature of cathode

스택의 온도가 증가한다.

- 5) 시스템 효율을 높이기 위해서는 연료유량을 낮춰 연료이용률을 높이고 재순환율을 증가시켜야 한다. 하지만 두가지 조건 모두 스택에서의 열응력을 증가시킬 수 있기 때문에 적절한 조건 설정이 필요하다.

후 기

본 연구는 산업자원부의 재원으로 한국에너지 기술 평가원(KETEP)의 지원을 받은 “10 kW급 건물용 SOFC (고체산화물 연료전지) 시스템 실증(No.20143010031810)” 과제 일환으로 수행되었습니다.

References

1. BP. Statistical Review of World Energy, BP plc, London, 2015, (accessed 28.07.15).
2. H.R. Ellamla et al. “Journal of Power Sources”, 293, 2015, 312-328.
3. L. Lopes, S. Hokoi, H. Miura, K. Shuhei, “Energy Build.”, 37, 2005, 698-706.
4. S. Ashina, T. Nakata, “Appl. Energy”, 85, 2008, 101-114.
5. H. Ren, W. Gao, “Energy Build.”, 42, 2010, 853-861.
6. R. Napoli et al. “Energy and Buildings”, 103, 2015, 131-146.
7. P. Lisbona et al. “Electrochimica Acta”, 53, 2007, 1920-1930.
8. R. Bove et al., “International Journal of Hydrogen Energy”, 30, 2005, 181-187.
9. A. Arsalis et al., “International Journal of Hydrogen Energy”, 36, 2011, 5010-5020
10. K.H. Lee, R.K. “Strand, Renewable Energy”, 34, 2009, 2831-2846.
11. Fuel cell systems explained, J. Larminie, et al, John Wiley & Sons, LTD.
12. W. Lehnert et al., “Journal of Power Sources”, 87, 2000, 57-63.
13. P. O. Graf et al., “Applied Catalysis A: General”, 332, 2007, 310-317.
14. J.B. Robinson et al., “Journal of Power Sources”, 288, 2015, 473-481