

1 kW 고체산화물 연료전지 스택의 내부개질 특성 연구

최영 $\mathbf{M}^{1,\dagger} \cdot \mathbf{\mathcal{C}}$ 안진수 $^1 \cdot \mathbf{\mathcal{C}}$ 이인성 $^2 \cdot \mathbf{\mathbf{M}}$ 흥열 $^1 \cdot \mathbf{\mathcal{C}}$ 모지웅 $^1 \cdot \mathbf{\mathcal{C}}$ 이종규 3

(재)포항산업과학연구원 1 에너지소재연구그룹, 2 PG-NCM PJT팀, 3 기후에너지연구그룹

Study on Internal Reforming Characteristic of 1 kW Solid Oxide Fuel Cell Stack

YOUNGJAE CHOI^{1,†}, JINSOO AHN¹, INSUNG LEE², HONGYOUL BAE¹, JIWOONG MOON¹, JONGGYU LEE³

¹Energy Materials Research Group, ²PG-NCM PJT Team, ³Climate and Energy Research Group, Research Institute of Industrial Science & Technology (RIST), 67 Cheongam-ro, Nam-gu, Pohang 37673, Korea

[†]Corresponding author: yjchoi_rist@rist.re.kr

Received 9 July, 2017 Revised 4 August, 2017 Accepted 30 August, 2017 Abstract >> This paper presents the performance characteristics of a 1 kW solid oxide fuel cell (SOFC) stack under various internal reforming and fuel utilization conditions. The Research Institute of Industrial Science & Technology (RIST) developed the 9-cell stack using a 20×20 cm² anode supported planar cell with an active area of 324 cm². In this work, current-voltage characteristic test, fuel utilization test, continuous operation, and internal reforming test were carried out sequentially for 765 hours at a furnace temperature of 700° . The influence of fuel utilization and internal reforming on the stack performance was analyzed. When the 1 kW stack was tested at a current of 145.8 A with a corresponding fuel utilization of 50-70% (internal reforming of 50%) and air utilization of 27%, the stack power was approximately 1.062-1.079 kW. Under continuous operation conditions, performance degradation rate was 2.16%/kh for 664 hours. The internal reforming characteristics of the stack were measured at a current of 145.8. A with a corresponding fuel utilization of 60-75% (internal reforming of 50-80%) and air utilization of 27%. As fuel utilization and internal reforming ratio increased, the stack power was decreased. The stack power change due to the internal reforming ratio difference was decreased with increasing fuel utilization.

Key words: Solid oxide fuel cell(고체산화물 연료전지), Anode supported planar cell(연료극 지지체 평판형 셀), Stack(스택), Internal reforming(내부개질), Fuel utilization(연료이용률)

Nomenclature

: efficiency, % η P: stack power, kW

Q: lower heating value of fuel, kW

U : utilization, %

Subscripts

: electrical el f : fuel

1. 서 론

고체산화물 연료전지(solid oxide fuel cell, SOFC) 는 산소 이온전도성이 있는 고체산화물을 전해질로 사용하여 600-1,000℃의 고온에서 운전되는 연료전지 로써 고효율 발전 및 열병합발전이 가능하다. 또한 기 존의 발전시스템에 비하여 SOx와 NOx의 배출량을 현저히 감소시킬 수 있어 친환경적인 저공해 발전이 가능하다는 장점을 가진다^{1,2)}. 또한 SOFC는 고온 (600-1,000℃)에서 작동하기 때문에 연료극에서 수소 이외에도 메탄, 메탄올, 에탄올, 가솔린, 바이오가스 등과 같이 다양한 대체 연료도 사용이 가능하며 이에 대한 연구도 이루어지고 있다³⁻⁷⁾.

SOFC 발전시스템은 연료전지 스택, 연료극 가스 및 공기극 가스의 공급을 위한 유량제어기 및 송풍 기, 탄화수소류 연료를 수소로 전환시키는 개질기, 연료극 가스 및 공기극 가스를 고온으로 스택에 유 입시키기 위한 열교환기, 스택 미반응 가스를 연소시 키기 위한 연소기 등의 mechanical balance of plant (MBOP)와 스택에서 나오는 직류전류를 교류전류로 변환시키는 전력변환기 및 제어시스템 등의 electrical balance of plant (EBOP)로 구성된다.

SOFC 발전시스템의 발전효율을 높이기 위해서는 시스템에서 발생되는 열원을 효율적으로 사용하기 위한 열교환망 설계와 열손실을 최소화하는 것이 매 우 중요하다. 일반적으로 스택에서 나오는 연료극의

미반응 가스는 연소기에서 연소되어 열교환기 및 개 질기에 필요한 열을 공급하게 된다. 이때 시스템의 열교환망 구성방법에 따라 개질기에 공급되는 열량 이 다르며 스택의 연료극에 유입되는 개질가스의 조 성도 달라진다. 또한 열교환망 최적설계를 통해 SOFC 시스템을 제작하더라도 각종 장치 및 배관에 서의 열손실, 운전조건 변경 등의 요인으로 개질기에 공급되는 열량에 변화하게 되고 스택에 공급되는 연 료극 가스의 조성도 변하게 된다. 따라서 SOFC 시스 템을 제작함에 있어 연료극가스의 조성 및 유량변화 에 따른 스택의 특성을 분석하는 것이 중요하다.

현재 포항산업과학연구원에서는 바이오가스 기반 고온형 연료전지 융합시스템 개발 과제를 수행 중에 있다. 본 연구에서는 5 kW급 SOFC 시스템의 설계 및 운전로직 수립을 위한 data 확보를 위해 1 kW급 스택을 제작하여 다양한 내부개질율 및 연료이용률 조건에서 스택의 전압, 출력 및 효율 등의 성능특성 을 분석하였다.

2. 실 험

2.1 1 kW급 SOFC 스택 제작

SOFC 스택은 셀, 밀봉재, 집전체 및 분리판 등의 구성요소로 이루어지며, 본 연구에서는 Fig. 1과 같 이 연료극 지지체형 평판형 셀을 테이프캐스팅 공정 으로 제작하였고, 밀봉재는 유리계의 고온 밀봉재를

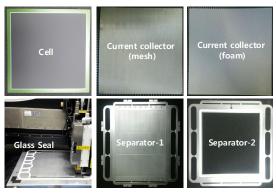


Fig. 1. SOFC stack components

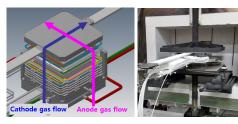


Fig. 2. SOFC stack 3D design and 1 kW stack

디스펜싱 공정을 적용하여 제작하였다. 집전체는 금속 mesh와 금속합금 폼을 사용하였고, 분리판은 STS444 소재와 포스코에서 SOFC용으로 개발한 STS400 계열의 소재를 사용하여 절단, 에칭 및 용접하여 제작하였다.

1 kW급 SOFC 스택은 크기가 20×20 cm, 반응면적이 324 cm²인 연료극 지지체형 평판형 셀 9장과구성요소를 조합하여 Fig. 2와 같이 제작하였다. 1 kW급 SOFC 스택의 연료극 및 공기극 가스는 교차흐름(cross-flow) 방식으로 설계하여 제작하였고, 스택온도 700℃ 및 전류 162 A (500 mA/cm²) 인가 조건에서 연료이용율 60-75% (내부개질률 50-80%), 공기이용률 15%에 해당하는 연료극 가스 및 공기극 가스가 흐를 때 분리판 내부에서의 가스유동이 균일하고 압력손실이 최소화되도록 분리판 채널 및 매니폴드를 설계하여 제작하였다.

2.2 스택 성능 평가

스택 구성요소들은 전기로에 설치된 구조물에 순 차적으로 쌓아 적층을 완료한 후 전기로의 온도를 상온에서부터 승온단계에 따라 순차적으로 올린 후 전기로 온도 750℃에서 연료극 전극의 환원을 수행 하였으며, 1 kW SOFC 스택의 승온 및 연료극 전극 환원까지는 69.5시간이 소요되었다.

연료극 전극의 환원 완료 후 전기로 온도 750℃ 환경에서 연료극 가스배관에 수증기의 공급이 없는 건조 분위기에서 수소를 27 SLPM을 공급하고 공기극배관에 공기를 27 SLPM을 공급하였을 때 각 셀의 개회로전압(open circuit voltage)은 1.327 V (상부 1번

Table 1. I-V characteristic - resulting values

Current (A)	Voltage (V)	Power (W)	Power density (W/cm ²)			
32.4	8.583	282.0	0.097			
64.8	8.160	531.5	0.182			
97.2	7.789	758.5	0.260			
129.6	7.472	970.5	0.333			
162.0	7.012	1,127.0	0.386			

셀), 1.320 V (2번 셀), 1.321 V (3번 셀), 1.314 V (4번 셀), 1.323 V (5번 셀), 1.303 V (6번 셀), 1.249 V (7번 셀), 1.310 V (8번 셀) 및 1.314 V (하부 9번 셀)로 정상 범위의 값을 보였다.

연료극 전극의 환원 완료 후 전기로 온도를 750℃에서 700℃로 낮춘 후 75시간부터 81시간까지 스택초기성능 평가(전류-전압 특성 및 연료이용률 변화에 따른 스택 성능)를 진행하였고 85시간부터 749시간까지 연속운전 성능평가 후 752시간부터 765시간까지 내부개질율 및 연료이용률 변화에 따른 스택성능 평가를 순차적으로 실험하였다. 모든 성능평가는 전기로 온도를 700℃로 고정한 상태에서 실시하였고, SOFC 스택의 연료극에는 내부개질 조건에 맞추어 수소, 메탄, 이산화탄소 및 물을 공급하고 공기극에는 공기를 공급하면서 실험하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 스택 초기성능 및 연속운전 성능

3.1.1 전류-전압(I-V) 특성

1 kW급 SOFC 스택의 전류-전압(I-V) 특성을 평가하기 위해 스택 인가전류 162 A (500 mA/cm²)기준으로 연료극에는 연료이용율 50% 및 내부개질률 50% 조건으로 H₂ 10.9 SLPM, CH₄ 2.73 SLPM, CO₂ 3.33 SLPM 및 H₂O 4.90 g/min을 공급하고, 공기극에는 공기이용률 30% 조건으로 air 86.55 SLPM을 공급한 후 스택에 전류를 0-162 A까지 90분 동안 1.8 A/min씩 증가시키면서 스택 성능을 평가하였다. 전

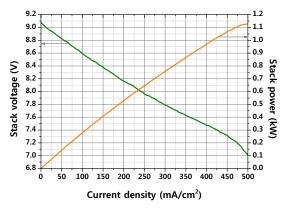


Fig. 3. I-V characteristic of 1kW class SOFC stack

Table 2. Gas flow rates at various fuel utilization conditions

Fuel		Cathode					
utilization (%)	H ₂ (SLPM)	CH ₄ (SLPM)	CO ₂ (SLPM)	H ₂ O (g/min)	Air (SLPM)		
50	9.81	2.45	3.00	4.41			
55	8.92	2.23	2.73	4.01			
60	8.18	2.04	2.50	3.68	86.55		
65	7.55	1.89	2.31	3.39			
70	7.01	1.75	2.14	3.15			

류를 증가시키면서 측정된 스택의 전압 및 출력은 Table 1 및 Fig. 3과 같다. 스택 인가전류 162 A에서 스택 전압 7.012 V, 스택 출력 1.127 kW 및 출력밀 도 0.386 W/cm²의 성능을 보였으며, 이를 통해 스택 구성요소 구성 및 분리판 교차흐름 구조가 적합하게 설계되었음을 확인하였다.

3.1.2 연료이용률 변화에 따른 스택 성능

연료이용률 변화에 따른 스택 성능 변화를 알아보 기 위해 전류 145.8 A (450 mA/cm²) 및 공기이용율 27%로 고정하고 내부개질률 50% 기준으로 연료이 용율을 50%에서 70%까지 5%씩 단계별로 증가시키 면서 각 단계별 30분씩 유지 후 스택의 전압 및 출력 을 측정하였으며 연료이용률별 연료극가스 및 공기 극가스의 유량은 Table 2와 같다.

연료이용률에 따른 스택의 전압, 출력 및 효율을 Table 3 및 Fig. 4에 나타내었다. 스택의 효율은 식

Table 3. Stack performance under various fuel utilization conditions

Fuel	Stack							
utilization (%)	Voltage (V)	Power (kW)	Efficiency (%)					
50	7.405	1.079	36.16					
55	7.399	1.078	38.05					
60	7.383	1.076	43.37					
65	7.340	1.070	46.55					
70	7.288	1.062	49.88					

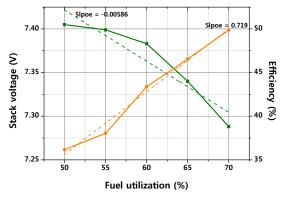


Fig. 4. Effect of fuel utilization - stack voltage and electrical efficiency

(1)과 같이 스택 출력과 연료극가스 중 수소 및 메탄 의 저위발열량 값을 이용하여 계산하였다.

$$\eta_{el} = \frac{P}{Q_f} \times 100 \text{ [\%]} \tag{1}$$

식 (1)의 계산에서 사용한 수소와 메탄의 저위발 열량(60°F 기준)은 119.943 kJ/g 및 50.036 kJ/g이며, 수소와 메탄의 분자량은 2.016 g/mol 및 16.043 g/mol이다.

연료이용률 50% 및 70%에서의 스택전압은 7.405 V 및 7.288 V로 연료이용률 70%에서의 스택전압은 연료이용률 50%에서의 스택전압 대비 약 1.6% 감소 한 것으로 측정되어 교차흐름 방식의 분리판 가스유 로 설계의 적합성을 확인하였다. 연료이용률에 따른 스택 전압은 Fig. 4와 같이 연료이용률 50%에서 70%까지 범위에서 -5.86 mV/U_f의 감소율을 보였고, 연료이용률 변화에 따른 스택효율의 변화는 연료이

용률을 1% 높이면 효율이 0.719% 증가하는 것으로 평가되었다.

3.1.3 연속운전 성능

연료이용률에 따른 스택 성능평가 후 스택에 전류를 145.8 A (450 mA/cm²) 인가한 상태에서 연료극가 스는 연료이용률 70% 및 내부개질률 50% 조건으로 H₂ 7.01 SLPM, CH₄ 1.75 SLPM, CO₂ 2.14 SLPM 및 H₂O 3.15 g/min을 공급하고, 공기극에는 공기이용률 27% 조건으로 air 86.55 SLPM을 공급한 상태에서 연속운전을 실시하였다. 연속운전 평가는 Fig. 5 및 Fig. 6과 같이 85시간부터 749시간까지 664시간 동안 평가하였다.

스택 연속운전 성능평가 결과 664시간 동안 스택 출력 1 kW (1.053-1.066 kW) 및 스택 효율 50%

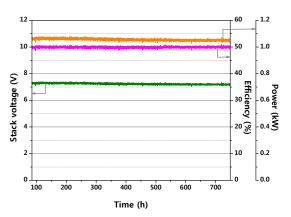


Fig. 5. Stack performance during continuous operation

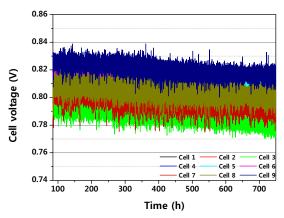


Fig. 6. Cell voltage during continuous operation

(50.05-50.07%)를 유지하였고, 스택 전압은 연속운전 시작시점인 85시간에 7.314 V였고 연속운전 종료시 점인 749시간에는 7.209 V로 2.16%/kh의 성능변화 율을 보였다. 셀 전압은 Table 4와 같이 664시간 동 안 7-19 mV 감소하였으며, 평균 15.2 mV 전압감소 를 보였다.

3.2 내부개질률 변화에 따른 스택 성능

연속운전 성능평가 종료 후 Fig. 7과 같이 내부개 질률 변화에 따른 스택의 성능을 752시간부터 765시 간까지 스택에 전류를 145.8 A 인가한 상태에서 공기이용율은 27%로 고정하고 연료극가스의 조성 및 유량을 변화시키면서 실시하였다. 연료극가스는 내부개질율 50%, 60%, 70% 및 80%의 조건에서 각각의 내부개질률마다 연료이용률을 60%에서 75%까지 5%씩 높여가면서 실시하였다. 각 조건에서 측정된스택의 전압, 출력 및 효율을 Table 5에 정리하였다.

각 내부개질률에 대해 연료이용률에 따른 스택전 압의 변화를 Fig. 8에 나타내었다. 각 내부개질률에 대해 연료이용률 60-75% 범위에서 스택의 전압변화

Table 4. Results of continuous operation - cell voltages

Time		Cell Voltage (V)										
(h)	Cell 1	Cell 2	Cell 3	Cell 4	Cell 5	Cell 6	Cell 7	Cell 8	Cell 9			
85	0.824	0.814	0.790	0.825	0.823	0.813	0.806	0.813	0.829			
749	0.817	0.801	0.775	0.807	0.805	0.794	0.789	0.798	0.814			

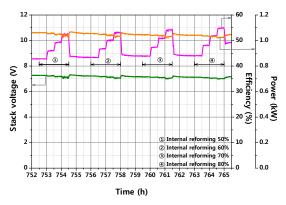


Fig. 7. Stack performance change during various internal reforming conditions

Fuel	Intorn	al raform	ing 50%	Internal reforming 60%			Internal reforming 70%			Internal reforming 80%		
	Internal reforming 50%			internal reforming 60%			Internal reforming 70%			Internal reforming 80%		
utilization	Voltage	Power	Efficiency	Voltage	Power	Efficiency	Voltage	Power	Efficiency	Voltage	Power	Efficiency
(%)	(V)	(kW)	(%)	(V)	(kW)	(%)	(V)	(kW)	(%)	(V)	(kW)	(%)
60	7.272	1.062	42.83	7.209	1.053	43.32	7.151	1.045	43.90	7.122	1.041	44.04
65	7.242	1.058	46.08	7.181	1.049	46.80	7.132	1.042	47.40	7.087	1.036	48.11
70	7.187	1.050	49.34	7.142	1.043	50.14	7.107	1.039	50.92	7.064	1.032	51.85
75	7.113	1.039	52.27	7.070	1.033	53.12	7.062	1.032	54.24	7.016	1.025	54.91

Table 5. Stack performance under various internal reforming conditions

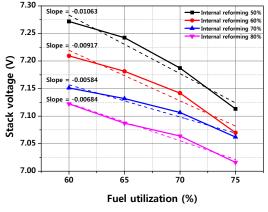


Fig. 8. Stack voltage and fuel utilization at various internal reforming conditions

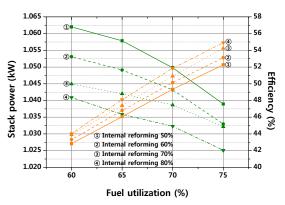


Fig. 9. Stack power and fuel utilization at various internal reforming conditions

율을 계산해보면 내부개질률 50%에서는 -10.6 mV/U_f, 60% - -9.17 mV/U_f, 70% - -5.84 mV/U_f, 80% --6.84 mV/Uf로 내부개질률이 높아질수록 연료이용률 증가에 따른 스택의 전압변화율이 감소하는 경향을 보였다.

각 내부개질률에 대해 연료이용률에 따른 스택 출

력 및 효율의 변화는 Fig. 9에 나타내었다. 연료이용 률 60%를 기준으로 내부개질률 50% 및 80%에서의 스택 출력은 1.062 kW와 1.041 kW로 21 W 차이를 보였고, 연료이용률 75%를 기준으로 내부개질률 50% 및 80%에서의 스택 출력은 1.039 kW와 1.025 kW로 14 W 차이를 보여 연료이용률이 높을수록 내 부개질률 변화에 따른 성능차이는 작아지는 경향을 보였다. 내부개질률 50-80% 범위에서 연료이용률 65%일 때 46.08-48.11%의 스택 효율을 보였으며, 스 택 효율을 50% 이상으로 유지하기 위해서는 연료이 용률을 최소 70% 이상으로 설정해야 함을 알 수 있 었다.

4. 결 론

본 연구에서는 수소, 메탄, 이산화탄소 및 물을 연 료극가스로 사용하여 내부개질조건에서 400 cm²급 연료극지지체 평판형 셀을 적용한 1 kW 스택의 초 기성능, 연속운전 성능 및 내부개질률 변화에 따른 성능평가를 전기로 온도 700℃ 분위기에서 실시하 였다.

- 1) 스택의 전류-전압(I-V) 특성은 스택에 전류를 162 A 인가시 스택 전압 7.012 V 및 스택 출력 1.127 kW의 성능을 보였다. 연료이용률 변화 에 따른 스택 특성은 스택의 인가전류 145.8 A 로 고정한 상태에서 연료이용률을 50%에서 70%까지 증가시키면 연료이용률 1%당 스택 효율이 0.719% 증가하는 것으로 평가되었다.
- 2) 연속운전 성능은 스택에 전류를 145.8 A 인가

- 한 상태에서 내부개질률 50%, 연료이용률 70% 및 공기이용률 27%로 664시간 동안 평가시 스 택전압은 2.16%/kh의 변화율을 보였다.
- 3) 내부개질률 변화에 따른 스택성능은 내부개질률을 높일수록 스택의 성능은 낮아지는 경향을 보였으며 연료이용률이 높을수록 내부개질률에 따른 스택 성능 차이는 감소하는 경향을 보였다. 내부개질률 50-80% 범위에서 스택 효율을 50% 이상 얻기 위해서는 연료이용률을 70% 이상의 조건으로 운전해야함을 알 수 있었다.

후 기

본 연구는 산업통상자원부의 재원으로 한국에너 지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과 제이다(No. 20153010130460).

References

- J. H. Hirschenhofer, D. B. Stauer, R. R. Engleman, and M. G. Klett, "Fuel cell handbook", 4th ed., Parsons Corperation Reading P.A for U.S. Department of Energy. 1998.
- R. O'Hayre, J. W. Cha, W. Colella, and F. B. Prinz, "Fuel cell fundamentals", 2nd ed., John Wiley & Sons, New York. 2008.
- N. Laosiripojana and S. Assabumrungrat, "Catalytic steam reforming of methane, methanol and ethanol over Ni/YSZ: the possible use of these fuels in internal reforming SOFC", J. Power Sources, Vol. 163, 2007, pp. 943-951.
- 4. G. J. Saunders and K. Kendall, "Reactions of hydrocarbons in small tubular SOFCs", J. Power Sources, Vol. 106, 2002, pp. 258-263.
- A. Lanzini and P. Leone, "Experimental investigation of direct internal reforming of biogas in solid oxide fuel cells", Int. J. Hydrogen Energy, Vol. 35, No. 6, 2010, pp. 2463-2476.
- Y. Shiratori, T. Oshima, and K. Sasaki, "Feasibility of direct-biogas SOFC", Int. J. Hydrogen Energy, Vol. 33, No. 21, 2008, pp. 6316-6321.
- Y. Shiratori, T. Ijichi, T. Oshima, and K. Sasaki, "Internal reforming SOFC running on biogas", Int. J. Hydrogen Energy, Vol. 35, No. 15, 2010, pp. 7905-7912.