

100 kW급 용융탄산염 연료전지 스택 및 발전 시스템 설계

고준호* · 강병삼 · 임희천

Design of a 100 kW MCFC Stack and Power Generation System

Joon-Ho Koh*, Byoung-Sam Kang, and Hee Chun Lim

Key Words: fuel cell (연료 전지), molten carbonate (용융 탄산염), stack design (스택 설계), fuel cell system design (연료 전지 발전 시스템 설계)

Abstract

Several design parameters for a 100 kW molten carbonate fuel cell stack was described. Approximately 170 cells are required to generate 100 kW at a current density of 125 mA/cm² with 6000 cm² cells. An overall heat balance was calculated to predict exit temperature. In order to limit the stack temperature in the range of 600-700°C, current load cannot exceed 75 mA/cm² at atmospheric operation. The 100 kW power is expected only under pressurization. Recycle of cathode gas by more than 50% is recommended to run the stack at 125 mA/cm² and 3 atm. Manifolds should be designed based on gas flow rates for the suggested operating condition.

1. 서론

연료전지 발전 방식 중에서 용융 탄산염을 전해질로 사용하는 용융탄산염형 연료전지(molten carbonate fuel cell: MCFC)는 비교적 높은 온도인 650°C에서 동작하는 시스템이다. 이러한 높은 온도에서 발전하는 특성에 따라 전극재료로 귀금속 촉매가 필요하지 않아 발전설비 제작비용을 줄일 수 있으며, 또한 석탄을 가스화한 연료를 사용할 수 있어 석탄을 이용하는 발전 시스템으로 구성할 수 있다. 이 외에도 고온의 배가스를 얻을 수 있어 복합발전에 의한 고효율 발전이 가능하다는 특징을 갖고 있어서 MCFC는 전력사업에 있어서 적용가능성이 가장 큰 차세대 발전 방식으로 알려져 있으며 대규모 상용발전 플랜트로서 보급될 가능성이 크다고 할 수 있다.

현재 국내에서의 MCFC 개발 목적은 장기적으로는 저공해 고효율의 새로운 발전원인 MCFC 발전 시스템 개발을 통하여 기존 발전 시스템을 대체하여 에너지 절약효과 및 지구환경 문제에 대응하고자 하는 것이며, 단기적으로는 발전 시스템으로 적용을 위하여 소규모의 발전 시스템 개발에 의한 국내 상용 기초기반 기술 확보 및 지원에 있다. 지금까지의 연구 개발 결과로, 스택의 구성요소 제작기술은 어느 정도 성숙되어 있어, 기초 기술 수준을 지난 시스템 용량을 증대하는 중간 기술 단계에 들어와 있다고 할 수 있다. 즉, 스택 주변부인 연료 처리 장치, 리사이클 블로워, 촉매 연소기, 폐열회수기(HRSG) 등의 BOP(Balance of Plant)의 개발이 시스템의 용량증대에 크게 영향을 미치는 단계에 도달해 있다고 할 수 있다. 그러나 이러한 중간 기술의 개발 및 평가에는 적정 크기의 시스템의 제작 및 운전을 통해서만이 얻을 수 있어, 대형시스템으로의 개발이 불가결하게 되고 있다. 더욱이 시스템의 효율 측면에서 보면 스택의 대형화가 불가

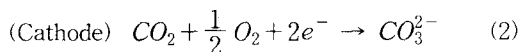
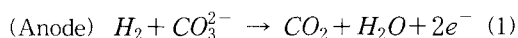
*한전 전력연구원
발전연구실, 연소신발전그룹
대전시 유성구 문지동 103-16

피하여, 현재 세계적으로 상용화를 전제로 한 MCFC 스택의 최소단위는 약 250 kW급을 대상으로 하고 있다. 현재의 국내 기술은 25 kW급 시스템 개발 능력을 보유하고 있어, 상용 스택의 최소 단위인 250 kW급까지의 개발이 추진되어야만이 상용화에 의한 보급등이 가능하게 된다. 이에 따라 MCFC의 상용화에 추진력을 주기 위한 중간단계로서 100 kW급 시스템의 개발이 수행되고 있다.

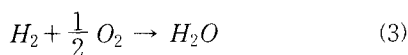
2. MCFC 발전 시스템

2.1 MCFC 작동 원리

용융탄산염 연료전지는 다공성 연료극(anode)과 공기극(cathode) 층 사이에 전해질인 용융탄산염을 지지하는 전해질판으로 구성되어 있다. 두 전극 중 공기극에서는 CO_3^{2-} 를 생성하는 산소의 환원 반응이 일어나고 연료극에서는 CO_3^{2-} 를 소모하는 수소의 산화 반응이 일어난다. 양극에서 만들어진 CO_3^{2-} 는 전해질을 통하여 확산, 전달되어 연료극 반응에 참여하고 산화에 의해 음극에서 생성된 전자는 외부회로를 통해 공기극으로 전달되어 환원 반응에 참여한다.



따라서 전지 전체에서의 총괄 반응은 다음과 같다.



2.1 MCFC 발전 시스템 구성의 기술적 사항

각 단위전지를 적층하여 발전기로서의 기능을 갖도록 하는 기술을 스택 제작 기술이라 하며 이 기술에는 여러 장의 단위전지로 구성된 스택이 최적의 성능을 낼 수 있도록 가스의 공급 방식, 온도 분포, 연료와 공기의 흐름, 가스의 누출, 전해질의 이동 등을 고려할 수 있는 매니폴드의 설계 및 제작 기술 등이 있으며 단위전지의 적층후 발생하는 스택내 및 외부 기기와의 절연, 스택의 냉각 방식 및 단열, 보온 등에 관한 기술도 함께 포함한다. 현재 개발 중인 MCFC 스택은 가스

의 균일한 공급이 용이하며 전해질의 이동문제를 해결할 수 있고 대형화가 용이한 내부 매니폴드 형식의 적층 기술을 채택하고, 연료 가스가 외부에서 공급되는 외부 개질형 스택 제작 기술의 개발을 목표로 한다.

개발되는 연료전지 스택은 사용 방법 및 사용되는 용도에 따라 주변 기기와 연결되어 전체 시스템으로 구성된다. 시스템은 연료 처리계, 스택 주변계, 배열 회수계 그리고 직교류 변환계 등으로 나누어진다. 이들 시스템을 구성하는 공정 기술의 확보도 중요한 요소이다. 연료 처리계는 연료의 종류에 따라 석탄가스를 이용하는 경우 석탄가스화설비, 천연가스인 경우 천연가스 개질기 등을 필요로 하며 스택 주변계의 경우 전지에 공급되는 가스의 온도, 유량, 조성 등의 조절을 목적으로 공기극, 연료극 가스 재순환 시스템 구성 기술이 있다. 배열 회수계의 경우 동력회수 및 가스 터빈, 증기 터빈과의 연계에 의한 복합 발전 기술 등을 포함한다. 이들을 종합적으로 연결할 수 있도록 시스템을 시뮬레이션하고 이를 바탕으로 주변 기기에 대한 상세 설계를 하며 최종적으로 종합적인 설계를 하는 설계 기술도 함께 개발되어야 한다. 또한 설계된 시스템을 설치하여 안전하고 안정적으로 운전하기 위하여 플랜트의 운전을 제어하는 기술과 시스템내의 제반 운전 조건의 확인을 위한 장기 운전 기술의 확립도 필요하다. 설비의 유지보수를 위한 설비 운영 기술이 포함되며 또한 계측을 통하여 운전 기록을 분석 평가함으로써 단위전지 및 스택의 개발에 반영하여 시스템의 조기 상용화를 위한 장기 운전 평가 기술도 개발되어야 할 기술중의 하나이다.

3. 100 kW MCFC 스택 및 시스템 설계

3.1 전극 및 스택 크기

스택 설계에서 고려할 사항들은 매우 많다. 먼저 전지 면적은 약 6000 cm^2 로서 전극 제작에 사용되는 Tape casting 장치 크기와 공정 조건을 고려하여 길이가 50~53 cm로 정하고 이 때의 폭은 110~115 cm 정도로 한다. 100 kW의 전력을 얻기 위한 총 적층 수는 전류-전압 데이터

를 근거로 계산되는데, 그림 1에서 보듯이 125 mA/cm²의 부하에서 약 0.8 V를 얻는다고 보면 100 kW를 위해 필요한 전지 수는 약 170장이 된다. 현재의 기술로는 170장으로 하나의 스택을 구성하는 것보다 2~3개의 스택으로 나누어 시스템을 구성하는 것이 안정적인 것으로 판단된다.

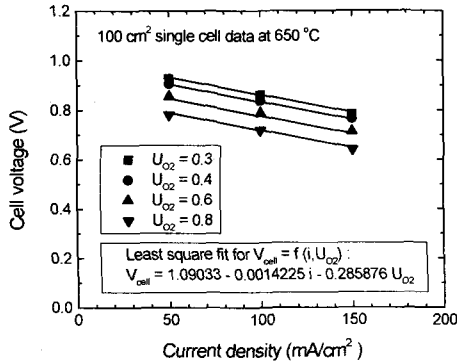


Fig. 1. Current-voltage data of MCFC

3.2 스택 출구 온도 예측 및 운전 조건

한편 전지 반응에 의해 얻어지는 전기 에너지 외에도 많은 양의 열이 발생(Q_{cell})하는데 이는 식 (3)의 총괄 반응에 대한 엔탈피 변화($-\Delta H_{cell}$, 650°C에서 247 kJ/mol)에서 전기 에너지 양을 제외한 에너지 크기에 해당한다.⁽¹⁾

$$Q_{cell} = (-\Delta H_{cell}) r_{H_2} - V_{cell} \cdot i \cdot A_{cell} \quad (4)$$

여기서 V_{cell} 과 i 는 각각 스택 전압과 부하 전류 밀도, 그리고 A_{cell} 은 전지당 단면적이다. r_{H_2} 는 전지 반응에 소모되는 총 수소 양으로서 부하 전류 밀도에 따라 Faraday 식에서 계산된다.

이렇게 발생하는 열에 의해 스택 온도가 상승하는데, 양극 gas와 음극 gas가 같은 방향으로 흐르는 co-flow 형태 스택인 경우 출구 부분 온도가 최고로 상승한다. MCFC의 안정적 운전을 위해서는 출구 온도를 700°C 이하로 조절하여야 하는데 이를 위해서 양극에 과량의 공기를 주입하여 스택 출구를 냉각한다. 과량 주입되는 양극 gas의 양은 산소 이용률에 의해 결정하는데, 이용률은 실제 반응 소모량을 주입량으로 나눈 비율이다. 부하 전류를 미리 결정하면 반응 소모량을 알 수 있으므로 발열량이 계산되고, 가스

이용률을 결정하면 유량을 알 수 있으므로 열 수지에 의해서 출구 온도를 계산할 수 있다. 유량을 F , heat capacity를 C_p 로 나타내면, 출구 온도 계산을 위한 열 수지 식은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} & (F_{in}C_{p,in}\Delta T_{in} - F_{out}C_{p,out}\Delta T_{out})_{anode} \\ & + (F_{in}C_{p,in}\Delta T_{in} - F_{out}C_{p,out}\Delta T_{out})_{cathode} \\ & + Q_{cell} = 0 \quad (\text{with } \Delta T = T - T_{ref}) \quad (5) \end{aligned}$$

출구 온도의 예측을 통해 어느 정도의 가스 유량, 즉 이용률과 부하 조건이 필요한 지를 결정할 수 있다. 그림 2는 식 (5)의 열 수지에 의해 계산되는 스택 출구 온도를 부하 전류 밀도와 공기극 가스 이용률 및 재순환 비율의 변화에 대해 나타낸 결과이다. 그림 2의 (a)는 스택 분리판 설계 기준으로서 연료 이용률 0.4의 음극 기체가 주입될 경우에 대기압에서의 운전시 출구 온도를 예측하는 것이다. 산소 이용률이 낮아지면 공기극 가스 유량이 증가하여 냉각 효과가 커지므로 출구 온도는 낮아진다. 그러나 공기극 유량의 증가는 이에 필요한 공기 압축기의 용량 증가와 가스 차압 증가의 요인이 되어 제한을 받는다. 공기 압축기의 용량을 이용률 0.3까지로 정한다면, 약 0.3의 산소 이용률로 운전할 때에 700°C 이내에서 출구 온도를 유지할 수 있도록 운전 가능한 부하 조건은 80 mA/cm² 정도이다. 그러나 양극 가스 차압을 고려하면 이보다 낮은 50 mA/cm² 정도의 부하 조건에서 상압 운전이 가능할 것으로 예측된다.

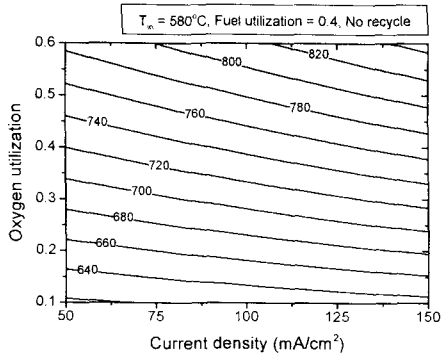
정상 운전에서는 연료 이용의 경제성을 위해 연료 이용률을 0.8로 높이는 것이 목표이다. 이때의 스택 출구 온도 예측은 그림 2의 (b)와 같다. 현재 목표로 하는 100 kW 출력을 얻기 위한 부하 조건은 125 mA/cm²인데, 이 때 출구 온도를 680°C 이하로 조절하려면 산소 이용률은 0.2 이하가 되어야 한다. 이 때 발생하는 과도한 차압으로 인해 대기압 하에서는 정상 운전이 어려우므로, 시스템 압력을 증가시키고 양극 gas를 재순환하여 냉각에 필요한 유량을 확보하는 가압 운전 방식을 사용하여야 한다. 그림 2의 (c)는 가압시에 125 mA/cm²의 부하 조건에서 예상되는 출구 온도이다. 산소 이용률을 0.3으로 제한 할 때에 필요한 양극 가스 재순환 비율은

약 0.5이다. 즉 스택에서 배출되는 양극 가스의 50%를 재순환하여 사용하면 안정적인 운전에서 목표치 출력을 얻을 수 있을 것으로 예상된다.

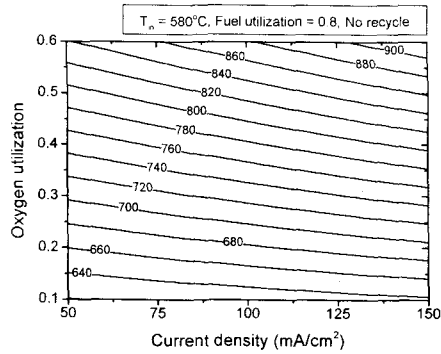
이와 같은 스택 설계 및 운전 조건을 정리하면 표 1과 같다.

Table 1. Specification of the 100 kW stack and its operating condition

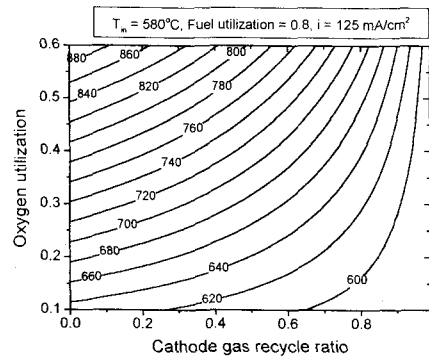
변수	설정치 또는 예상치
Manifold 형태	내부 manifold
가스 흐름	Co-flow
전지 면적	6000 cm ² (길이 53 cm)
스택 적층 수	85/stack × 2 stacks
음극 가스	H ₂ :CO ₂ =4:1 + Steam 30%
양극 가스	O ₂ :CO ₂ =1:2 (공기 사용)
수소 이용률	0.4 (상압시), 0.8 (가압시)
산소 이용률	0.3
양극 가스 재순환	0.5 (가압시)
부하 전류 밀도	50~75 mA/cm ² (상압) 125 mA/cm ² (가압)
입구 가스 온도	580°C
출구 가스 온도	680°C (목표치)
운전 압력	1~5 기압
예상 출력	46~66 kW (상압 운전시) 102 kW (가압 운전시)



(a) 연료 이용률 = 0.4



(b) 연료 이용률 = 0.8



(c) 양극 가스 재순환시

Fig. 2. Predicted stack exit gas temperature

3.3 분리판 설계

여러 개의 단위전지가 연결됨에 따라 전지 사이에는 bipolar separator가 설치되고 스택의 상하 끝부분에는 end plate를 설치하여야 한다. 분리판의 각 표면에는 양극 혹은 음극 가스가 전달되는 통로가 설치된다. 스택 입출구에는 양극 및 음극 가스가 각각 분배되거나 합쳐지는 manifold가 존재한다. 내부 manifold 형태의 스택에서는 따라서 분리판 면적이 전극 면적보다 커지며 이의 설계가 매우 중요하다.

표 2에서 보듯이 양극에는 산소 대신 공기를 사용함에 따라 대량의 질소가 주입되어 음극보다 유량이 매우 커진다. 한편 양극과 음극에서의 반응식 (1)과 (2)에서 알 수 있듯이 양극에서는 수소 반응량의 1.5배(몰 기준)에 해당하는 가스가 소모되는데 음극에서는 수소 반응량에 해당하는 가스량의 증가가 진행된다. 이러한 특징에 의해 스택 내에서 가스의 유량비가 변화하는 현상을 고려하여 manifold를 설치하여야 한다. 현재 구상되는 스택에서의 가스 흐름 형태와 분리판 단면적에서 보는 manifold hole들의 모습은 그림 3과 같다.⁽²⁾

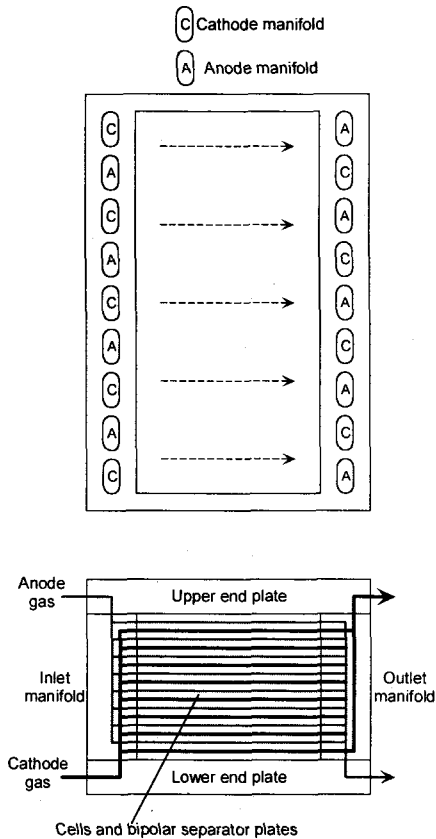


Fig. 3. Schematic of separator and stack

그림 3과 같은 분리판 형태에서 manifold 수와 크기는 표 1과 같은 운전 예상 조건에서의 유량을 기준으로 정하여야 한다. Manifold 설계에서 중요한 것은 압력 분포에 따른 유량의 분배인데, 같은 유량에 대해 압력 강하는 시스템 압력에 반 비례한다. 즉 시스템 압력이 3 기압만 되어도 대기압에서보다 압력 강하가 1/3로 줄어드므로 많은 양의 공기극 가스 주입 및 재순환이 가능하고 냉각 효과가 증가하여 부하 전류를 증가시키면서 출력 또한 증가할 수 있다. 표 2는 표 1의 대기압 및 가압 운전 조건에서 예상되는 유동 관련 변수값들을 대략 계산한 것이다.

한편 분리판 설계에 직접 관계되는 것은 유체 속도와 Reynolds number인데 이를 계산하기 위해서는 가스 통로 단면적이 주어져야 한다. 전극판 위를 흐르는 가스의 통로 높이를 1.2 mm, 폭은 120 cm로 가정하고, 각 manifold는 직경 41

mm, 중심부 거리가 35 mm인 타원형이라고 보았을 때의 가스 유동 속도와 Re는 표 3과 같다.

Table 2. Variables for gas flows

$i = 75$ (mA/cm ²) at 1 atm	이용률=0.4		이용률=0.3	
	Anode inlet	Anode outlet	Cathode inlet	Cathode outlet
유량 (SLPM)	1189.9	1456.5	3003.9	2604.1
밀도 (kg/m ³)	0.1813	0.2730	0.4761	0.4130
점도 × 10 ⁵ (kg/m.s)	2.947	3.458	3.644	3.928
$i = 125$ (mA/cm ²) at 3 atm	이용률=0.8		이용률=0.1765 †	
	Anode inlet	Anode outlet	Cathode inlet	Cathode outlet
유량 (SLPM)	991.6	1435.8	8509.6	7843.2
밀도 (kg/m ³)	0.5439	1.048	1.428	1.257
점도 × 10 ⁵ (kg/m.s)	2.947	3.519	3.644	3.936

(† 주입되는 산소에 대한 이용률 0.3에 50% recycle을 고려한 이용률임)

Table 3. Velocity and Reynolds number

75 mA/cm ² at 1 atm				
(m/sec)	M.F.-in	Cell-in	Cell-out	M.F.-out
Anode	5.6204	0.5061	0.6920	6.1486
Cathode	11.351	1.2775	1.2373	13.742
Re	M.F.-in	Cell-in	Cell-out	M.F.-out
Anode	2048	3.74	6.56	2875
Cathode	8782	20.03	15.61	8558
125 mA/cm ² at 3 atm				
(m/sec)	M.F.-in	Cell-in	Cell-out	M.F.-out
Anode	1.5612	0.1406	0.2274	2.0205
Cathode	10.718	1.2064	1.2422	13.796
Re	M.F.-in	Cell-in	Cell-out	M.F.-out
Anode	1706	3.11	8.13	3565
Cathode	24878	56.73	47.59	26089

음극 및 양극 가스는 입구 manifold(M.F.-in)를 거쳐서 전지 통로(Cell-in)에 분배된 후 전지 출구(Cell-out)에서 출구 manifold(M.F.-out)에 모이어서 배출되므로, 표 3에서는 각 위치에서의 값을 차례로 계산하여 나타내었다. 이 계산 결과에 의하면 manifold에서의 가스 유동 속도가

전지 통로 내부에서보다 매우 크고 laminar flow 와 turbulent flow의 전이 영역에 있음을 알 수 있다. 반면에 전지 통로의 유동은 laminar flow 로 볼 수 있다.

표 3에서 시스템 압력 증가에도 불구하고 양극 가스 속도가 대기압 조건에서와 거의 같은 것은 부하 증가에 따라 유량이 증가하며 대기압 조건에서보다 recycle로 인해 산소의 실제 이용률이 매우 낮아지기 때문이다. 표 3에서 보듯이 입출구 가스 유량 변화보다 양극/음극 가스 유량 차이가 매우 심하므로 이를 고려하여 manifold 크기를 결정하여야 한다.

3.4 공정 시스템 설계

현재 구상되는 외부 개질형 100 kW MCFC 시스템의 대략적인 공정은 그림 4와 같이 나타낼 수 있다. 스택 내부 온도를 600~700°C로 유지하기 위하여 가압하에서 공기극 가스의 이용률을 0.3 정도로 낮게 운전하며 고온 블로어를 이용하여 반응된 공기극 가스를 재순환하여 다시 사용함으로써 스택 전·후단의 산소 이용률은 0.2 이하로 유지된다. 연료로는 천연가스를 스택 개질기를 통하여 개질된 합성 가스를 연료극에 공급하며 탄소 석출과 수성가스 전이 반응을 위하여 정상 운전에서는 연료 가스의 30%정도가 스택으로 주입된다. 스택에서 미 반응된 연료극 가스는 냉각기를 거쳐 기수 분리기에서 물과 분리되어서 촉매연소기로 공급되고, 연소에 의해 대부분 이산화탄소로 변환 후 공기극에 필요한 반응가스로 사용되거나 개질기에 공급되어 개질 반응

에 필요한 열원을 공급하기 위한 촉매 연소용 연료로 사용된다. 또한 초기 운전 시에 보일러 공급되어 스택 생산을 위한 열원으로 사용될 수 있도록 구성되어 있다. 스택에서 생산된 직류 전원은 인버터를 통하여 교류로 바뀌게 된다. 100 kW MCFC 시스템에 공급할 천연가스의 열량은 최소한 195.57 kW이며 생산되는 전력이 100 kW 이면 시스템 내에서 사용되는 전력을 배제한 최대 시스템 효율은 약 51%이다.

4. 결론

100 kW MCFC 스택은 6000 cm² 전지 170장이 필요하며, 대기압에서 운전 가능한 부하는 50-75 mA/cm², 그리고 이 때의 수소 및 산소 이용률은 0.4와 0.3인 것으로 예상된다. 시스템 압력을 3 기압으로 증가시키면 125 mA/cm²의 부하와 0.8의 수소 이용률에서 산소 이용률이 0.3, 그리고 양극 가스 재순환비는 0.5가 필요한 것으로 예상된다. 이 때의 분리판 manifold에서 가스 유동은 turbulent에 가까운 것으로 해석된다.

참고문헌

- (1) Koh J.-H., Kang B.-S. and Lim H. C., 2000, *J. Power Sources*, Vol. 91, p161.
- (2) 강병삼, 고준호, 이충곤, 임희천, 1999, *한국에너지공학회지*, Vol. 8, No. 4, p592.

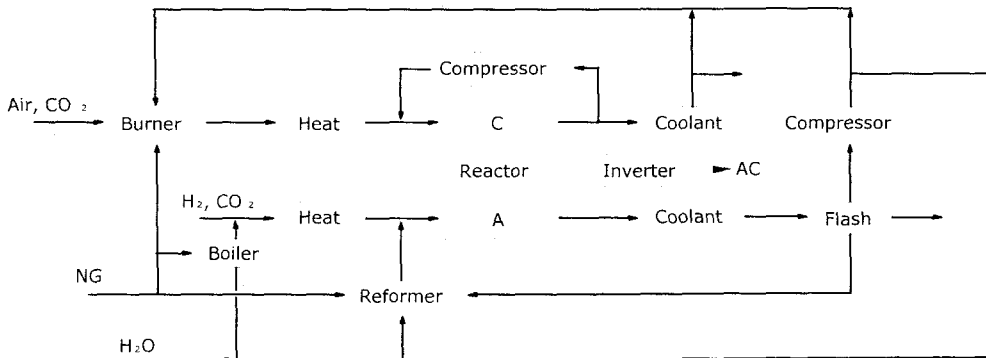


Fig. 4. Process flow diagram of the 100 kW MCFC power generating system