

대면적 용융탄산염 연료전지 시스템 동특성 분석

강병삼 · 고준호 · 이충곤 · 임희천

한전전력연구원 · 발전연구실

Analyses of Large Cell Area MCFC System Dynamics

Byoung-Sam Kang, Joon-Ho Koh, Choong-Gon Lee and Hee-Chun Lim

Power Generation Research Laboratory, Korea Electric

Power Research Institute, KEPCO

요 약

대면적 용융탄산염 연료전지 운전 시 스택에서 발생하는 스택 내 온도차와 극간 차압의 문제점을 해결하기 위하여 정상상태 특성 및 동특성을 분석하였다. 두 가지 용융탄산염 연료전지 스택(5 kW(3,000 cm², 20장), 3 kW(6,000 cm², 5장))의 운전 결과를 통하여 스택 성능에 중요한 영향을 미치는 조작변수(전류밀도, 연료 이용률, 공기 이용률)와 조절변수(스택 온도차, 연료극 차압, 공기극 차압)를 결정하였다. 조작변수들에 대한 조절변수들의 변화량인 스택의 정상상태 이득률을 구하여 시스템의 안정성을 분석하고 동특성을 나타내는 전달함수를 구하였다. 전달함수는 3×3 행렬로 시간 지연항이 없는 전형적인 1차 시스템으로 표현되었다. 동특성 분석에 의해 대면적 용융탄산염 연료전지 시스템의 최적 운전 조건을 설정할 수 있었다. 5 kW 스택의 경우 전류밀도가 150 mA/cm²일 때 스택 출구 온도를 680°C 이하로 유지하기 위해서는 공기극 가스 recycle에 의한 가압 운전이 필요하였으며, 효과적으로 용융탄산염 연료전지 시스템을 제어하기 위해서는 조작변수와 조절변수 상호간의 연계성을 제거하기 위한 다중 입·출력 제어 및 연계 제거기가 필요함을 확인하였다. 이 결과는 향후 대면적 용융탄산염 연료전지 시스템의 제어구조 설계와 운전 모드 설정에 중요한 자료로 사용될 것이다.

Abstract—The steady state and dynamic characteristics of large cell area MCFC stacks were analyzed to solve the problems such as temperature difference generated in stacks and pressure difference between anode and cathode. Manipulated variables (current density, fuel utilization rate, oxidant utilization rate) and controlled variables (temperature difference, anode and cathode pressure difference) which had an important effect on the MCFC stack performance were determined using operation results of two types of MCFC stacks (5 kW (3,000 cm², 20 ea), 3 kW (6,000 cm², 5ea)) The stability and transfer function representing system dynamics were obtained by steady state gain rate which showed the relative change between MVs and CVs. The transfer function was a 3×3 matrix and a typical first order system without time delay. The optimal operating condition of large cell area MCFC stacks could be determined by analyzing dynamic characteristics. In case of a 5 kW MCFC stack, pressurized operation with recycle flow should be used to control the outlet temperature less than 680°C and to control the MCFC system effectively, MIMO control or decoupler should be used to remove the interaction between MVs and CVs. This result will be used as important data in determining the control structure design and operation mode of large cell area MCFC systems in the future.

1. 서 론

용융탄산염형 연료전지(Molten Carbonate Fuel Cell)는 기존의 천연가스 이외에도 석탄가스 등 다양한 연료를

사용할 수 있는 새로운 형태의 발전장치이다. 또한 에너지 효율이 높으며 고온의 스택을 이용한 복합발전이 가능하고, 대기오염 물질의 배출이 적다는 특징이 있어 차세대 발전 방식으로 주목받고 있다. 선진 각국에서는

기술개발을 지속적으로 추진하여 상용화 단계에 들어가고 있는 기술이다. 국내에서는 전력연구원을 중심으로 국가 선도 기술 개발과제로 100 kW급 외부 개질형 MCFC 시스템 개발의 2 단계 과제가 진행중에 있으며 현재 전극 면적이 6,000 cm²인 단위전지를 40장 적층한 25 kW급 스택의 제조기술을 보유하고 있다. 그러나 스택 제조기술에 비하여 상대적으로 시스템 구성 및 스택 운전 등 주변 기술에 대한 개발 연구가 미흡하며 특히, 스택의 수명과 직접 연관된 스택의 온도 및 압력을 제어할 수 있는 기술에 대한 연구는 전무한 실정이다.

대면적 스택에서는 단위 전지에서와는 달리 발열에 의해 연료 또는 산화제의 흐름방향으로 온도구배가 형성되는데 온도 제어를 하지 않으면 스택내부에 적정온도 이상의 고온부가 발생하게 된다. 전극 면적이 3,600 cm²인 스택에서 병행류로 연료와 산화제를 흘릴 경우, Fujimura 등의 계산에 의하면 스택의 온도 편차는 103°C이며 최대 온도는 710°C인 것으로 나타났다^[4]. 상용 소프트웨어인 PHOENICS를 이용한 수치해석 결과 이론적인 값으로 전극 면적이 3,000 cm²인 20장의 5 kW 스택인 경우 온도 편차 및 최고 온도는 156°C, 729.8°C이고 6,000 cm²인 40장의 전지로 구성된 25 kW 스택인 경우 202.2°C, 771.8°C였다^[5]. 대면적 연료전지 스택의 실제 실험 결과에 의하면 5 kW 스택인 경우 전류밀도 150 mA/cm²에서 스택의 입구와 출구 온도차이는 최대 140°C였으며 3 kW 스택의 경우는 102°C였다. 스택에서 고온부가 발생하면 전극, 분리판 등 구성재료가 쉽게 열화되고 이로 인해 전지의 수명이 단축된다.

스택의 온도를 적정온도 범위내에 유지하는 방법으로 스택의 부하를 낮춰 운전함으로써 스택에서 발생하는 열량을 근본적으로 줄이거나 냉각제인 공기극 가스량을 증가시켜 냉각제 열용량을 증대시키는 방법이 알려져 있다^[6]. 이 두 가지 방법 중 공기극 가스를 냉각제로 사용하는 방법이 보다 전기를 많이 발생시킬 수 있어 경제적인 것으로 판단되며 응용 가능성이 높은 것으로 평가된다. 그러나 공기극 가스를 냉각제로 사용하는 방법에서는 연료극과 공기극의 유량 변화에 의해 두 극간 차압이 발생되므로 온도 제어 외에 추가로 극간 차압을 제어해야 하는 문제점이 있다. 이 문제점을 해결하기 위해서는 스택의 동특성에 관한 연구가 선행되어야만 할 과제이다.

본 연구에서는 전극 유효면적이 3,000 cm²인 단위전지 20장이 적층된 5 kW MCFC 스택과 6,000 cm²인 단위전지 5장이 적층된 3 kW MCFC 스택의 운전을 통해 스택 제어에 있어서 중요한 조절변수인 스택 내부의 최대 온도차와 극간 차압을 허용 범위내에 유지할 수 있는 조작변수들을 선정하고, 조작변수의 변화에 따른 조

절변수의 영향성을 분석하여 스택의 동특성 모델을 제시하고 운전방법을 제공하고자 한다.

2. 실험 및 고찰

2-1. 대면적 MCFC 시스템 정상상태 특성 분석

2-1-1 대면적 MCFC 스택

Table 1에 전극 유효면적이 3,000 cm²인 단위전지 20장이 적층된 5 kW MCFC 스택과 전극 면적이 6,000 cm²인 단위전지 5장이 적층된 3 kW MCFC 스택의 사양을 나타내었다. 5 kW MCFC 스택은 전류밀도 150 mA/cm² 즉, 450 A에서 단위전지 평균 0.7 V 이상의 성능을 갖는 스택으로 전지 출력 6 kW 성능을 보였다^[1]. 3 kW MCFC 스택은 단위전지당 평균 600 W 이상의 출력으로 3.7 kW의 스택 성능을 보였다. 두 가지 모두 가스 분배 형태는 병행류 흐름(co-flow)이며 내부 메니폴드 타입으로 구성되어 있으며 운전 조건은 상압, 650°C에서 연료이용률 40%를 기준으로 하였다. 반응가스는 연료극인 경우 72%의 수소와 18%의 이산화탄소, 10%의 스팀을 사용하였으며 공기극인 경우 70%의 공기와 30%의 이산화탄소를 사용하였다.

MCFC 스택은 전극, 전해질, matrix 및 분리판으로 구성된 단위전지를 Fig. 1과 같이 순차적으로 수직 방향으로 적층하여 용량을 증가시켰으며 스택의 적층은 분리판에 Ni 집전판 및 연료극을 장착한 후 전해질, matrix를 놓고 스테인레스강 집전판 및 공기극 분리판을 장착하였다 스택 구성 시 스택 내 열을 공급하기 위해 스택의 상단과 하단에 각각의 히터를 부착하였으며 스택과 히터 사이에는 전기적 절연을 위하여 운모판을 설치하였다. 발전된 전기를 인출하기 위하여 맨 위와 아래 판에 집전용 단자를 설치하였으며 전류 부하기를 이용하여 생산된 전기가 소모되도록 하였다. 분리판은 스테인레스강을 모재로 하여 전기 도금법에 의한 Ni 코팅을

Table 1. Specification of 5 kW and 3 kW MCFC stack.

Item	Specification	
	5 kW stack	3 kW stack
Output power	6 kW DC	3.7 kW DC
Effective area of electrode	3,000 cm ²	6,000 cm ²
Cell number	20 cells	5 cells
Type of separator	Hard rail, SUS316L	Soft rail, SUS316L
Gas distribution	Co-flow type	
Fuel utilization	40~80% at 150 mA/cm ²	
Operating condition	650°C, 1 atm	

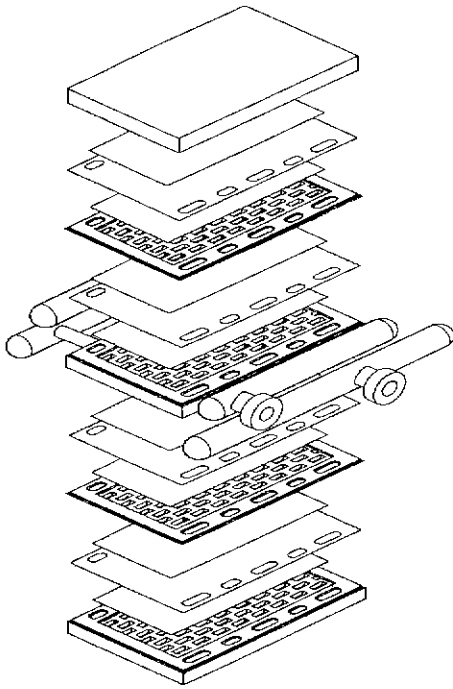


Fig. 1. Configuration of a co-flow type 3 kW MCFC stack composed of 5 soft rail separators with 6,000 cm² electrode effective area.

하였으며 wet seal부에는 Al 코팅을 하여 운전 중 고온 부식에 대비하였다.

Fig 2는 5 kW 스택과 3 kW 스택의 분리판을 나타낸 것으로 5 kW급 스택에서 이용되는 내부 메니폴드형 분

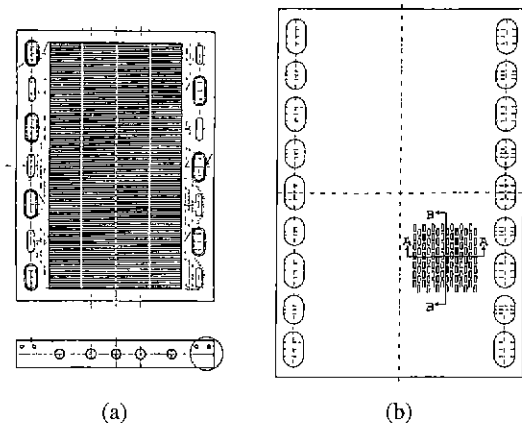


Fig. 2. Schematic diagram of large area separators ((a) 3,000 cm² area hard rail separator of a 5 kW MCFC: etching type channel, (b) 6,000 cm² area soft rail separator of a 3 kW MCFC A-A: gas flow channel, B-B: T.C. injection channel).

리판은 면적이 5,000 cm²(600 mm×800 mm)의 직사각형 형태로 제작되었고 전극 유효 면적은 3,000 cm²로 분리판 내에서의 가스 흐름은 에칭 가공된 가스 채널을 통하여 연료gas와 공기의 흐름이 같은 방향으로 흐르게 되었다. 분리판 내부의 가스 흐름은 가스 분배구가 연료극은 3개구로 공급된 후에 4개구로 배출되도록 배치하였고 공기극 기스는 4개구로 공급된 후에 3개구로 배출된다. 유로의 폭은 각각 4 mm, 5 mm가 되도록 만들었다. 스택 내부의 온도를 측정하기 위하여 온도측정을 위하여 5개의 분리판마다 두께 10 mm 되는 두꺼운 중간 분리판을 별도로 제작하여 열전대(thermocouple)를 삽입할 수 있도록 하였다. 또한 각 중간판에는 가스흐름 방향과 직각 방향으로 온도를 측정할 수 있도록 좌측, 중앙, 우측 등 3군데에 열전대를 설치하여 모두 12개의 열전대를 설치하였고 상·하판과 가스공급 및 배출 메니폴드에도 열전대를 삽입할 수 있도록 구성하였다.

3 kW급 스택에서 이용되는 내부 메니폴드형 분리판은 면적이 10,000 cm²(814 mm×1200 mm)의 크기로 전극 유효 면적은 6,000 cm²로 기존의 에칭 가공형과는 다르게 프레스 성형법을 이용한 것으로 기존의 유로부와 집전체를 통합한 것으로 공기극과 연료극의 가스 분배구는 좌우가 대칭되는 형상으로 제작되었다. 온도 측정판은 중간판에 따로 설치하여 맨 위와 아래 판을 합쳐서 3개의 판에서 온도를 측정할 수 있다. 온도 측정판에는 15군데에 열전대를 설치하였으며 가스 흐름 방향으로 3군데씩 5지점을 설치하였다. 프레스 성형의 깊이는 17 mm이며 연료극과 공기극의 압력강하는 20, 60 mmH₂O가 되도록 설계되었다. 가스 흐름은 연료극은 4개구로 공급된 후에 5개구로 배출되도록 배치하였고 공기극은 5개구로 공급된 후에 4개구로 배출된다 병행류 흐름으로 설계된 대면적 스택의 경우 스택 내부의 가장 낮은 온도는 스택의 입구 부분(Tin)이며 예열기를 거쳐서 580°C가 되도록 구성되어 있고 가장 높은 곳은 스택 중앙의 출구 부분(Tout)이다.

2-1-2. MCFC 시스템 구성

MCFC 발전시스템의 제어 및 자료 수집부는 제어 판넬, 데이터 모니터링 시스템, PLC 및 주변 측정 기기들로 구성되고 있다. 운전 시에는 PLC에 입력된 프로그램에 의하여 운전을 제어하고 이때 자료수집 및 저장기능이 동시에 이루어지도록 되어 있다. 운전 시 제어 범위는 전지 내 반응온도 및 유량, 극간 압력 등으로 스택의 반응온도는 PLC에 입력된 프로그램을 통하여 SCR을 제어함으로써 스택에 장착된 전기 히터의 출력을 조절하여 제어한다. 공기극, 연료극 예열 온도와 가습기 온도는 정온(55°C) 제어방식을 채택하였고, 스택 정상운전 전에 실시하는 전처리 과정에서 별도로 설치된 프로그램

램 온도 조절기를 통하여 제어하였다. 유량은 전류밀도와 가스 이용률에 따라 변화되는 유량을 유량 조절기를 통하여 제어한다. 각종 운전자료는 데이터 모니터링 시스템을 통하여 감시되며 자료분석을 위하여 스택 내 단위전지 온도 및 전압의 분포상황도 CRT 화면상에 나타나도록 하여 운전상황을 쉽게 파악할 수 있도록 하였다.

MCFC 운전 시험설비는 가스 공급부, 공급가스 예열부, 스택, 배가스 처리부와 제어 및 자료 수집부로 이루어져 있다. 연료가스 공급부에서는 조합가스나 천연가스 개질기에서 개질된 수소가스가 사용되고 공기극의 공기는 압축기로부터 공급되며 이산화탄소는 가스 저장실에서 유량 조절기를 통하여 제어 밸브 조정함으로써 공급된다. 연료극의 탄소소출 방지를 위하여 가습기를 설치하였다. 가습되는 수분의 양은 열역학적 관계에 의해 온도로 제어하였고 공급가스 예열부에서는 2개의 가스 예열기를 공기극 및 연료극에 각각 설치하여 동작용도가 650°C인 스택 내에 공급되는 가스가 열충격을 받지 않도록 스택의 입구 가스의 온도가 580°C가 되도록 구성하였다. 스택은 상·하판에 전기 히터를 설치하여 650°C가 유지되도록 열을 공급하였다. 배가스 처리부에서는 스택에서 반응 후 배출되는 가스를 냉각하기 위한 냉각기 그리고 기수 분리기 및 잉여수소 연소를 위한 flare stack 등으로 구성되어 있다¹¹⁾.

스택 내부의 가스 흐름에 대한 입·출구 방향 라인에 수주계를 설치하여 대기압과 차압을 감시할 수 있도록 구성하였으며 수주계의 측정 범위는 최대 400 mmH₂O 까지 측정할 수 있다. 부하량의 변화, 연료극, 공기극의 유량변화에 대해 차압은 수주계를 통하여 측정되며 스택 내부의 온도는 데이터 모니터링 시스템을 통하여 1 초를 주기로 기록된다.

2-1-3. 운전 조작변수와 조절변수의 선택

MCFC 발전 시스템에 있어서 중요한 운전 변수는 스택 입·출구에서 발생하는 압력 차를 일정하게 유지하는 것과 스택의 최고 온도를 허용온도 이하로 유지하는 것으로 요약할 수 있다. 스택의 일정 온도 유지는 스택의 입구의 온도가 580°C로 정해져 있기 때문에 스택 내부의 온도차를 100°C 이하로 유지하는 것으로 조절변수를 설정한다. 가스 입구 및 출구방향에 대한 온도는 엔트로피와 내부저항 및 전기 화학적인 반응식에 근거하여 표현될 수 있다.

$$Q = TAS - nF(\sum \eta + IR) \quad (1)$$

스택내의 과도한 온도차는 고온의 부식과 더불어 재료의 성능 열화(degradation)를 가져오고 국부적인 전류 발생에 의한 전기 화학적 발열반응에 의해 전극의 열화, 부식 등에 의한 전해질 소모 및 변형, 전해질 유지 및

전지구조에 영향과 더불어 내부저항의 증가 및 가스누설을 유발하게 된다^{12,13)}. 스택 내부의 온도차를 일정하게 유지하기 위하여 냉각제로는 공기극의 공기량을 증가시켜서 생각하는 방식을 사용하게 되며 연료극과 공기극의 압력 차를 줄이면서 공기량을 늘이기 위해서는 압력을 증가시켜 운전하여야 한다¹⁴⁾.

상용 소프트웨어인 PHOENICS를 이용한 수치해석 결과¹⁵⁾ 이론적인 값으로 전극 면적이 3 000 cm²인 경우 20장의 5 kW 스택인 경우 최저 및 최고 온도는 573.7°C, 729.8°C(온도차: 156.1°C)이고 6,000 cm²인 40장의 전지로 구성된 25 kW 스택인 경우 569.6°C, 771.8°C(온도차: 202.2°C)였다. 모두 상압 운전을 기준으로 하였으며 스택의 맨 위와 아래 부분은 650°C의 단열조건으로 하였다. 실제 스택의 경우 20장의 5 kW 스택인 경우 최대 온도차는 140°C였으며 5장으로 구성된 3 kW 스택인 경우 102°C였다. 스택 운전의 기본 목표는 정전류하에서 장시간 성능 열화가 되지 않고 전기를 발생시키는 것이므로 상압 운전인 경우 스택 내의 일정한 온도차와 압력 차를 유지하면서 운전하여야 한다.

MCFC 시스템의 동특성 분석은 시스템의 운전 중에 발생 가능한 상황에 대하여 시스템의 특성 변화에 대하여 스택을 보호하기 위하여 운전 조작에 대한 특성 분석을 위하여 조작변수(MV)와 조절변수(CV)를 결정할 수 있다. MCFC 시스템과 같이 조작변수와 조절변수가 두 개 이상인 다중 입·출력(Multi-Input Multi-Output) 공정한 경우 여러 가지 입력에 대한 출력의 변화 값이 다르기 때문에 조작변수들을 정해진 조절변수에 맞게 선택하여야 한다. 조작변수와 조절변수의 선택이 적절하게 이루어지지 않으면 공정 시스템이 불안정해지고 제어의 제어계의 성능이 나빠지고 안정성의 여유를 줄이게 된다¹⁶⁾.

스택 내부의 온도차를 일정하게 유지하기 위하여 냉각제로는 공기극의 공기량을 증가시켜서 생각하는 방식을 사용하게 되며 연료극과 공기극의 압력차를 줄이면서 공기량을 늘이기 위해서는 압력을 증가시켜 운전하여야 한다. 이와 같은 경우, 제어 대상이 되는 조절변수는 스택 내부 온도차, 연료극과 공기극의 압력 차가 되고 조작변수는 부하량(전류밀도), 연료 이용률과 공기 이용률로 정할 수 있다. 스택 내부의 온도차는 100°C 이하로 유지되어야 하며 스택 입구의 온도가 580°C로 정해진 경우 온도차에 대한 제어만 하면 가능하지만 유량의 증가에 따라 입구온도가 변하게 되고 이러한 온도 변화는 외란 변수로 설정될 수 있다. 또한 차압의 경우 연료극과 공기극의 차압이 200 mmH₂O로 유지되어야 하므로 공기극과 연료극의 입구 압력이 대기압과 200 mmH₂O 이하로 유지되기 위해 출구 압력과 대기압과의 차압이 0이 되어야 하지만 실제 시스템에서는 약간의 차압이 형

Table 2. Specification of control variables in a large cell area MCFC stack.

Variables	Item	Specification
MV (Manipulated Variable)	I (current density)	0~150 mA/cm ²
	Uf	40%~80%
	Uox	30%~60%
CV (Controlled Variable)	ΔT (Tout-Tin)	100°C
	ΔPa (Pa, in-Pa, out)	200 mmH ₂ O
	ΔPc (Pc, in-Pc, out)	200 mmH ₂ O
DV (Disturbance Variable)	Tin	580°C
	Pa out	1 atm.
	Pc. out	1 atm.

성되므로 이러한 압력 차이도 외란 변수로 설정할 수 있다. 대면적 스택에 대한 조작, 조절, 외란변수에 대한 특성을 Table 2에 나타내었다.

2-1-4. 정상상태 이득율을 통한 시스템의 안정성 분석
다중 입·출력 제어에 대한 조작변수와 조절변수의 선택법은 상태 이득 행렬법과 특이값 분석 방법이 있다^[4] 이러한 제어 및 조절변수 상호간의 결정에 대한 안전성과 시스템의 안정적인 제어를 위하여 정상상태의 이득(K)과 RGA(Relative Gain Array) map과 SVA(Singular Value Analysis)를 통한 조건수(condition number)를 구할 수 있다.

RGA는 Bristol이 다변수 공정 제어문제의 분석을 위해 개발한 체계적인 방법으로 정상상태의 정보를 이용하여 공정상호 간섭의 크기와 효율적인 제어 및 조작변수의 선택법으로 상태 이득을 계산하여 정상상태의 무차원 비를 비교 값으로 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\lambda_{ij} = \frac{(\partial C_r / \partial M_j)_M}{(\partial C_r / \partial M_j)_C} = \frac{\text{얼린루프이득}}{\text{닫힌루프이득}} \quad (2)$$

여기서, i, j=1 ..., n이다.

식(1)에서 $(\partial C_r / \partial M_j)_M$ 은 M_j를 제외한 모든 조작변수를 일정하게 유지한 상태에서 계산된 편미분을 의미한다.

SVA는 특이값을 이용하여 조작변수들과 조작 변수들의 선택, 제안된 제어방법의 강건성 평가 및 최적의 다중루프 형태의 결정을 할 수 있다. n개의 조작변수와 n개의 조절변수를 갖는 공정에 대해 정상상태에서 다음과 같이 선형적인 모델이 주어질 경우를 고려하면,

$$C=KM \quad (3)$$

여기서, C는 n개의 조절변수들로 구성된 벡터이고, M은 n개의 조작 변수들로 구성된 벡터, 그리고 K는 정상상태의 이득행렬일 때 다음 식(3)의 K⁻¹K의 고유값의

양의 제곱근을 특이값이라 하고

$$\|K^{-1}\alpha\|=0 \quad (4)$$

이러한 값들을 통하여 공정 상태를 분석할 수 있으며 최저 특이값과 최대 특이값의 비로서 다음과 같이 구해지는 조건수를 이용하여 사각 및 비사각 행렬에 대하여 K값의 크기와 조건수(Condition Number)의 크기에 따라 주어진 공정 시스템의 상태를 확인할 수 있다^[6].

$$CN = \frac{\sigma_{max}}{\sigma_{min}} \quad (5)$$

SVA는 RGA의 개념을 확장한 제어쌍 결정 문제, 연제제거와 내부 모델제어와 같은 다변수 제어제의 강건성 평가 등에도 사용되고 있다.

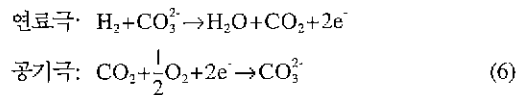
시스템의 조작변수 및 조절변수의 선택 및 안정성 분석 이후 최종적으로 시스템의 동특성을 나타내는 전달 함수를 통하여 기존의 비례-적분(Proportional-Integral)제어와 현재 다변수 입·출력(Multi-Input Multi-Output)공정에서 많이 사용되는 모델 예측제어(Model Predictive Control)를 적용해 볼 수 있다^{[10][11]}. 연료전지 시스템은 전형적인 다변수 입·출력 공정이면서 입·출력 변수간의 상호작용이 심하여 기존의 제어기법으로는 적용하기 힘들며 스택의 성능이 시간에 따라 변화하여 정상상태의 값이 변화하기 때문에 제어에 필요한 모델링을 일정 시간에 따라 계속적으로 수행해야 하는 적응제어(Adaptive Control)를 사용해야 한다^[11].

2-1-5. 정상상태 특성 분석

2-1-5-1. 5 kW MCFC 스택의 정상상태 특성 분석

Fig. 3에 전류밀도의 변화에 따른 스택 내의 입·출구 온도를 나타내었다. 전류밀도가 높아짐에 따라 입구 온도에 비해 상대적인 출구 온도의 증가로 스택내의 온도차가 커지고 있다. 전류밀도가 150 mA/cm²인 경우 스택 입구의 온도는 상대적으로 낮게 설정하였는데 이것은 스택의 온도차가 최대 140°C까지 증가함에 따라 스택 출구의 온도를 허용 범위내에 유지하기 위하여 입구 온도를 547°C까지 감소시켜 운전하였다.

대면적 MCFC 스택 내에서 연료극과 공기극에서 일어나는 전기화학 반응식은 다음 (6)식과 같이 나타낼 수 있다.



(6)식에서 보듯이 연료극인 경우 수소 1몰이 반응하여 각각 스택과 이산화탄소 1몰이 생성되며 공기극인 경우 이산화탄소 1몰과 산소 0.5몰이 반응하여 전해질 속으로

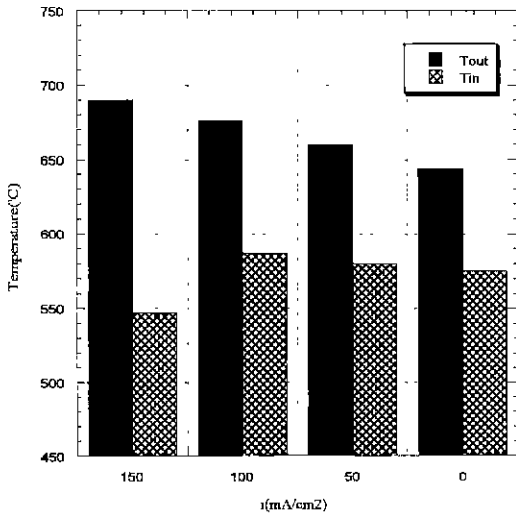


Fig. 3. Effects of current load on the inlet and outlet temperature of a 5 kW MCFC stack at $U_f/U_{ox}=40/40\%$.

함침되므로 부하가 많을수록 상대적으로 유량이 많은 공기극 가스는 줄어들고 유량이 적은 연료극 가스는 늘어나서 스택 입구의 연료극과 공기극간의 압력 차는 줄어든다. Fig. 4는 전류밀도의 증가에 따라 연료극과 공기극의 입구 부분의 압력 차를 나타낸 것이다. 전류밀도의 증가로 연료극 가스는 증가하고 공기극 가스는 감소하여 압력 차가 점차로 감소함을 보이고 있다.

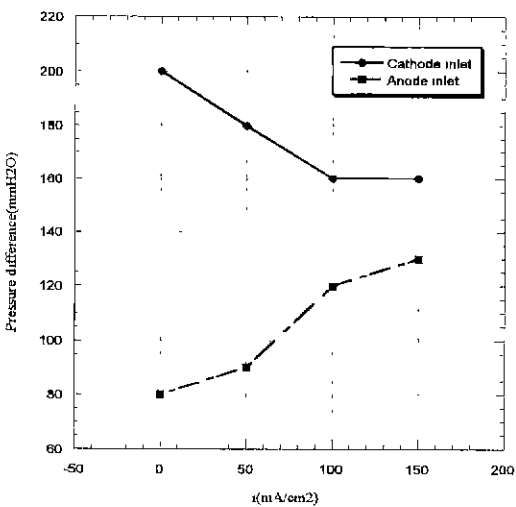


Fig. 4. Effects of current load on the inlet pressure difference of a 5 kW MCFC stack at $U_f/U_{ox}=40/40\%$.

Table 3. Effects of fuel, air utilization on the pressure difference of a 5 kW MCFC stack.

U_f	U_{ox}	P_a, in	P_a, out	dPa	P_c, in	P_c, out	dPc
40	40	130	80	50			
60	40	80	40	40	160	70	90
70	40	70	35	35			
40	40				160	70	90
40	60	130	80	50	80	30	50
40	70				70	30	40

* U_f [%], U_{ox} [%], P_a [mmH₂O], P_c [mmH₂O], $i=150$ mA/cm²

스택에 연료량이 증가함에 따라 연료극 입구의 압력 차는 커지게 되고 공기량이 증가함에 따라 공기극 입구의 압력 차는 커지게 된다. 상압 운전 시에 스택 출구의 압력은 대기압과 거의 같다고 가정하면 연료극과 공기극의 압력 차는 결국 연료량과 공기량에 의해서 조절될 수 있으며 출구측 차압은 외란변수로 처리할 수 있다. 다음 Table 3은 연료 이용률의 변화에 따른 공기극과 연료극의 차압을 나타낸 것이다.

각각의 조작변수에 대한 조절변수의 특성 분석한 결과 5 kW 스택의 정상상태 이득 행렬과 RGA를 다음과 같이 구할 수 있었다.

$$K = \begin{pmatrix} 1.0000 & 0.0270 & 0.0541 \\ 0.7143 & -1.0000 & 0.0000 \\ -0.3077 & 0.0000 & -0.6923 \end{pmatrix}, \Lambda = \begin{pmatrix} 1.0047 & 0.0194 & -0.0241 \\ 0.0194 & 0.9806 & 0.0000 \\ -0.0241 & 0.0000 & 1.2410 \end{pmatrix}$$

정상상태 이득 행렬을 통하여 조작변수와 조절변수와 상호 이득율을 알 수 있으며 상대 이득 행렬은 대칭 행렬이며 각 행, 열의 합이 모두 1이 된다. 또한 이 행렬을 통하여 스택 내의 온도차는 전류밀도로, 스택의 공기극 차압은 공기 이용률로, 스택의 연료극 차압은 연료 이용률로 제어할 수 있음을 보이고 있다.

위의 시스템 특성상 조작 변수에 대한 스택의 입·출구 영향은 차압의 영향에 비하여 상당히 느린 반응이며 이러한 경우는 RGA 분석 시에 정상상태의 이득율이 아닌 기율기로 대체해서 계산할 수 있다¹⁴. 또한 특이값은 {0.5873, 0.8098, 1.4439}이고 이 시스템의 조건수는 2.4501로 대체적으로 시스템이 안정적으로 제어될 수 있음을 보이고 있다.

2-1-5-2. 3 kW MCFC 스택의 정상상태 특성 분석

Fig. 5에는 3 kW 스택에서 전류밀도의 변화에 따른 스택 내의 입·출구 온도를 나타내었다. 스택의 입구 온도를 일정하게 유지하였기 때문에 전류밀도가 높아짐에 따라 출구 온도의 증가로 스택내의 온도차가 커지고 있

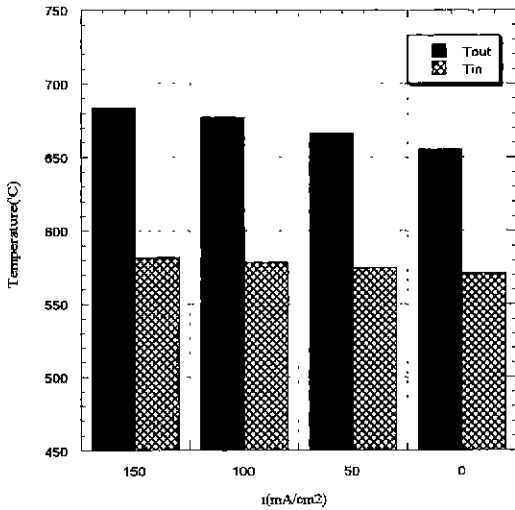


Fig. 5. Effects of current load on the inlet and outlet temperature of a 3 kW MCFC stack at Uf/Uox=40/40%.

다. 5 kW 스택에 비하여 온도 변화 폭이 작은 이유는 스택이 5장으로 구성되어 전체적인 열용량이 작고, 면적이 커짐에 따라 스택의 맨 위와 아래 히터판에 의해 650°C로 균일하게 가열되며, 분리판의 타입을 soft rail을 사용함으로써 가스 유로의 크기 변화에 따라 연료극, 공기극 유량이 냉각제로 작용하여 스택 내부를 균일하게 냉각하고 있기 때문이 것으로 분석된다.

Fig. 6은 전류밀도의 증가에 따라 연료극과 공기극의 입구와 출구의 압력 및 그 압력 차를 나타낸 것이다. 5

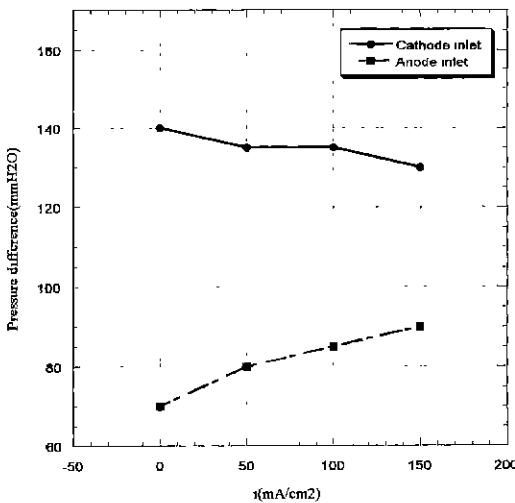


Fig. 6. Effects of current load on the pressure difference of a 3 kW MCFC stack at Uf/Uox=40/40%.

Table 4. Effects of fuel, air utilization on the pressure difference of a 3 kW MCFC stack.

Uf	Uox	Pa, in	Pa, out	dPa	Pc, in	Pc, out	dPc
40	40	160	75	85			
50	40	135	70	65			
60	40	120	65	55	165	30	135
70	40	110	65	45			
80	40	95	60	35			
40	30				240	65	175
40	40				165	30	135
40	50	160	75	85	120	10	110
40	60				85	0	85

*Uf [%], Uox [%], Pa [mmH₂O], Pc [mmH₂O], i=150 mA/cm².

kW 스택과 같이 전류밀도가 증가함에 따라 연료극 가스는 증가하고 공기극 가스는 감소하여 압력 차가 점차 감소함을 보이고 있다. 그 감소량은 5 kW 스택에 비하여 작은 값을 나타내었는데 이것은 20장의 스택에 비하여 5장의 스택 내부의 차압이 적게 걸리기 때문인 것으로 분석된다.

스택에 연료량이 증가함에 따라 연료극 입구의 압력 차는 커지게 되고 공기량이 증가함에 따라 공기극 입구의 압력 차는 커지게 된다. 상압 운전 시에 스택 출구의 압력은 대기압과 거의 같다고 가정하면 연료극과 공기극의 압력 차는 결국 연료량과 공기량에 의해서 조절될 수 있으며 출구측 차압은 외란변수로 처리할 수 있다. Table 4은 3 kW 스택에서 연료 이용률의 변화에 따른 공기극과 연료극의 차압을 나타낸 것이다.

3 kW 스택의 이득율과 상대 이득 행렬은 다음과 같이 구할 수 있다.

$$K = \begin{pmatrix} 1.0000 & 0.4091 & 0.6420 \\ 0.5714 & -0.9286 & 0.0000 \\ -0.2581 & 0.0000 & -1.0000 \end{pmatrix} \Delta = \begin{pmatrix} 0.9208 & 0.2318 & -0.1526 \\ 0.2318 & 0.7682 & 0.0000 \\ -0.1526 & 0.0000 & 1.1526 \end{pmatrix}$$

특이값은 {0.622, 1.0662, 1.5202}이며 조건수는 2.4433으로 5 kW 스택과 거의 유사한 안정성을 가지고 있다.

2-2. 대면적 MCFC 시스템의 동특성 분석

대면적 MCFC 시스템의 운전에 있어서 스택 내의 온도를 허용범위 내에 유지하기 위해 스택 냉각용 공기를 증가시키면 공기극의 유량 증가로 인해 공기극의 압력이 증가하는 상호연계성(반작용)이 나타나게 된다. 또한 연료량의 증가는 이용률의 감소로 연료비를 증가시키는 반작용이 있으므로 최적의 운전은 부하에 맞는 최소한

의 연료량으로 스택 내부의 온도차를 유지하면서 운전하여야 한다. 전력량을 증가시키기 위해서는 가능한 한 높은 전류밀도로 운전하여야 하나 전류밀도의 증가는 스택 내부의 온도차를 커지게 하므로 조절변수들의 제한 조건에 맞는 최적의 장기 운전 조건을 설정하여야 하며 이를 위해서는 스택의 조작변수와 조절변수에 대한 특성을 정확히 분석할 필요가 있다.

2-2-1. 5 kW MCFC 시스템 동특성 분석

Fig. 7은 445시간의 전처리 시간을 제외한 총 5,760 시간의 운전시간에 따른 전류밀도의 변화에 대한 스택의 입·출구의 온도변화를 나타낸 것이다. 2,002시간에 연료극 예열기 교체 관계로 온도를 내리는 과정 외에는 평균 100 mA/cm²의 전류밀도와 공기 이용률과 연료 이용률을 40%로 유지하면서 운전하였다. 운전 시간에 따른 스택의 입·출구 온도차 변화는 연료극 예열기 교체 이후 점차로 증가하고 있는데 이것은 가스 분석기에 의해 연료극에 질소의 검출이 나타나는 시점과 동일한 것으로 공기극 가스의 cross leak가 출구 온도 상승의 주된 원인인 것으로 분석된다^[4]. 전체적인 운전 시간에 따른 연료 이용률과 전류밀도 변화에 대한 동특성 시험 조건을 Table 5에 정리하여 나타내었다.

4구간 이후의 구간 특히 4,360시간 이후의 운전은 공급된 연료를 개질기를 통하여 개질 가스를 공급한 관계로 4구간까지의 데이터만 스택의 동특성을 분석하는 자료로 활용하였다. 4,360시간 이후에서는 전류밀도 변화에 대해 스택의 출구 온도는 상승하고 연료량의 증가

Table 5. Operation conditios of fuel utilization and current density for dynamic characteristic test of the 5 kW MCFC system.

	Operation time (hrs)	Utilization rate (%)		Load change (A)
		Anode	Cathode	
1	440~500	0~40	0~40	OCV→150→300→450→300
2	945~960	40~70	40~60	300→OCV→300
3	2300~2600	40~60	40~60	300→450→OCV→300
4	3300~3500	40~60	40	300→450→300

(공기극의 공기량 증가)에 대해 스택의 입구 온도는 감소하는 것으로 나타났다. 이러한 경향은 조합가스를 사용할 때에도 같은 경향을 보이고 있다.

1구간에서는 다양한 연료 이용률의 변화와 부하변화가 있어서 여러 가지 동특성을 해석 할 수 있으며 Fig. 8은 1구간(440~500 hrs)에서 연료량 변화와 부하 변화에 따른 스택의 입·출구 온도변화를 나타낸 것이다. 444시간에서 447시간동안 OCV하에서 연료 이용률이 40% 증가되어 스택의 입·출구 온도가 감소됨을 보이고 있다. 연료량 변화에 따른 스택의 입·출구 온도변화를 보면 입구 온도변화 폭(43°C)이 출구 온도 변화폭(6.7°C)보다 큰 것을 알 수 있다. 447시간에서 449시간에서는 정해진 연료량에 대해 부하량을 150 A로 증가시킴으로

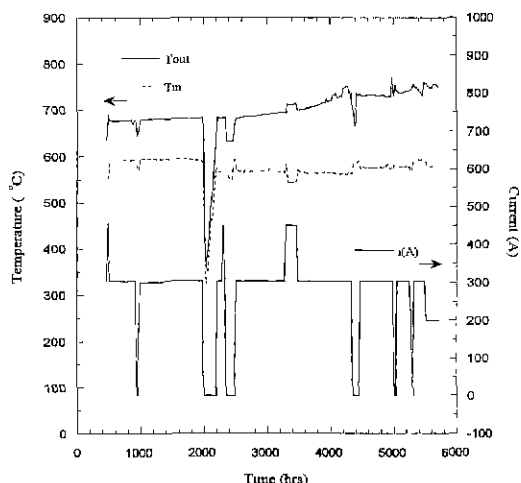


Fig. 7. Effects of current load on the inlet and outlet temperature of a 5 kW MCFC stack during the continuous operation (Tout: stack outlet temperature, Tin: stack inlet temperature, i (A): current load).

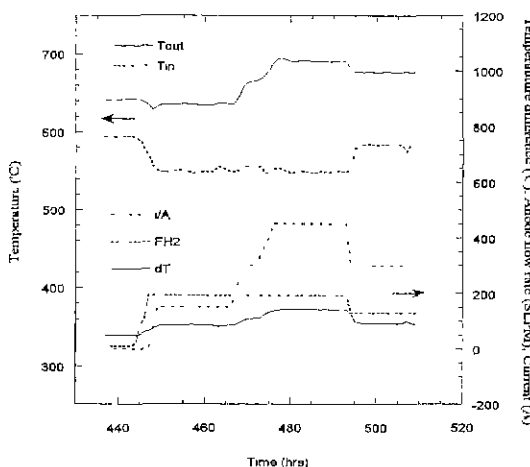


Fig. 8. Effects of current load and anode flow rate change on the inlet and outlet temperature of a 5 kW MCFC stack between 440 and 500 hrs of operation (Tin: inlet temperature, Tout: outlet temperature, dT: temperature difference between inlet and outlet temperature, FH₂: flow rate of hydrogen (SLPM), i: current load).

써 스택의 입·출구 온도가 일정하게 유지되고 있다. 467 시간에서 476시간까지는 정해진 연료량에 대해 부하를 OCV에서 450 A까지 증가시키기에 따라 스택의 출구 온도가 상승(55.40°C)하여 입·출구 온도차가 증가하였다. 스택의 입구 온도는 연료량에 따라서는 변화하지만 연료 이용률이 30%로 정해진 경우 스택 입구 온도는 부하변화(150 A)에 무관하게 거의 일정한 값을 보였다. 연료량과 부하를 동시에 변화시킨 493시간에서 495시간 동안의 구간에서는 스택의 부하 변화에 의한 출구 온도의 상승 영향과 연료량의 변화에 의한 입구 온도의 감소로 스택의 입·출구 온도차가 심해짐을 보이고 있다. 출구 온도의 연료 및 부하에 대한 변화는 연료량의 증가에 의한 온도 감소분과 부하량의 증가에 의한 온도 상승분의 영향이 증첩되어 나타나고 있다.

2구간에서는 부하 변화에 대한 공기 이용률 시험과 연료이용률 시험이 짧은 시간동안 수행되어 조작변수의 변화에 대한 조절변수의 동특성을 나타내기 어렵지만 전체적인 시스템 분석이 된 후에 실험적인 자료로 활용될 수 있다.

Fig. 9는 3구간(2,300~2,600 hrs)에서 연료량 변화와 부하 변화에 따른 스택의 입·출구 온도변화를 나타낸 것으로 2,345시간에서 2,369시간 동안 일정한 연료량에 따라 부하를 300 A에서 OCV로 변경함에 따라 스택의 입·출구 온도가 모두 감소됨을 보이고 있다. 이러한 현상은 연료 이용률이 30%일 경우 스택 입구의 온도는 거

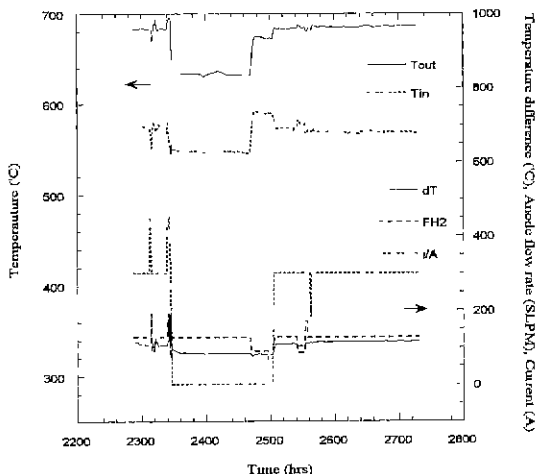


Fig. 9. Effects of current load and anode flow rate change on the inlet and outlet temperature of a 5 kW MCFC stack between 2,280 and 2,740 hrs of operation (Tin: inlet temperature, Tout: outlet temperature, dT: temperature difference between inlet and outlet temperature, FH₂: flow rate of hydrogen (SLPM), i: current load).

의 변화하지 않음과 비교해 볼 때 비선형성과 조작변수 상호간에 연계성을 보이고 있다. 부하 변화량에 따른 스택의 입·출구 온도변화는 출구 온도변화 폭(50°C)이 입구 온도변화 폭(27°C) 보다 크게 작용함을 보이고 있다. 2,470시간에서 2,506시간까지는 정해진 부하에 대해 연료량을 40%에서 70%까지 감소시키기에 따라 스택의 입·출구 온도가 모두 상승(40°C)되었고 온도차의 변화는 거의 없음을 알 수 있다. 2,506시간에서 2,542시간까지는 연료량과 부하가 동시에 변화했을 경우 스택의 부하 변화에 의한 출구 온도의 상승 영향과 연료량의 변화에 의한 입·출구 온도의 감소로 스택의 입·출구 온도차가 심해짐을 보이고 있다. 출구 온도는 부하에 의한 온도 상승 효과가 연료량의 증가에 의한 온도 감소 효과보다 커서 상승하였으며 입구 온도는 부하 변화보다 연료량의 증가에 더 많은 영향을 받아서 감소하는 것으로 나타났다. 이 구간에서도 연료 및 부하에 대한 변화는 연료량의 증가에 의한 온도 감소분과 부하량의 증가에 의한 온도 상승의 영향이 증첩되어 나타나고 있다. 이 결과를 기초로 다음과 같이 MCFC 스택의 동특성을 나타내는 전달함수를 구할 수 있었다.

$$\begin{pmatrix} \Delta T \\ \Delta P_c \\ \Delta P_o \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1.000 & 0.0270 & 0.0541 \\ 9102s+1 & 12547s+1 & 13653s+1 \\ 0.7143 & -1.000 & 0.0 \\ 5s+1 & s+1 & \\ -0.3077 & 0.0 & -0.6923 \\ 5s+1 & & s+1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I \\ U_i \\ U_{ox} \end{pmatrix}$$

여기에서 스택은 시간 지연이 없는 1차 시스템으로 표현할 수 있다고 가정하고 이 가정하에서 시상수를 구하였다. 전형적인 1차 시스템의 경우 조작변수의 계단 변화에 따른 조절변수의 응답특성은 Fig 10으로 나타낼 수 있는데 시상수는 정상상태 값의 63.2%일 때의 시간에 해당한다. 시스템을 2차 이상으로 볼 수도 있으나 이 경우 시스템의 특성이 복잡해진다¹⁴⁾ 전달함수에 사용된 모든 변수는 모두 정규화(normalized)된 편차변수 값을 이용하였다. 스택에서의 연료극과 공기극 유량은 공기극과 연료극의 압력 차에 전혀 변화를 주지 않는 것으로 분석되었다. 스택 내의 입·출구 온도차는 조작 변수들의 시상수는 시간 단위로 계산되며 스택 내의 차압은 연료극과 공기극의 유량에 대해 즉각적으로 변화되며 전류밀도의 변화에 대해서는 5배 가량의 차이를 보이고 있지만 이 값은 스택 내의 온도차에 비하면 미비한 값이며 전류밀도의 증가에 따라 전기 화학반응이 활성화되어 (6)식과 같이 연료극의 스택 내 유량증가와 공기극의 유량 감소에 대한 변화라고 볼 수 있다. 연료 이용

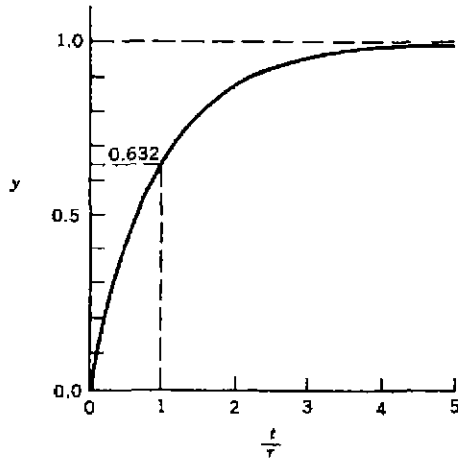


Fig. 10. Step response of a first order process without time delay (τ : time constant).

를과 공기 이용률의 변화에 대한 스택의 시상수는 연료극과 공기극의 차압의 변화에 대한 즉각적인 응답을 나타내고 있다. 동특성에 대한 분석 결과 5 kW 스택인 경우 스택 내의 온도차에 대한 전류밀도 및 이용률을 Table 6에 나타내었다.

Table 6을 보던 전류밀도 150 mA/cm²에서는 연료 및 공기 이용률 조정만으로는 스택내의 온도차를 100°C 이하로 유지할 수 없다는 것을 알 수 있다. 그러나 부하가 낮은 100 mA/cm²에서는 연료 및 공기 이용률을 55% 이하로 조절할 경우에는 스택의 온도차를 100°C 이하로 유지할 수 있었다. 이 때 연료극과 공기극의 스택 입구 부분의 압력은 각각 90, 145.3 mmH₂O였으며 스택 내의 극간 차압이 정상상태의 30 mmH₂O 보다 약 25 mmH₂O 정도 증가하였다.

2-2-2. 3 kW MCFC 시스템 동특성 분석

Fig 11은 3 kW MCFC 스택에 전류밀도의 계단 변화에 대한 스택의 입·출구 온도 변화를 나타낸 것이다. 전류밀도 150 mA/cm², 연료극, 공기극 이용률을 40%를 정상상태로 보았을 경우 전류밀도에 변화에 대해 스택은 전형적인 1차 시스템의 응답 특성을 보이는 것으로 나타났다. 응답 특성을 분석한 결과, 3 kW MCFC 스택의 전달함수를 다음과 같이 표현할 수 있었다.

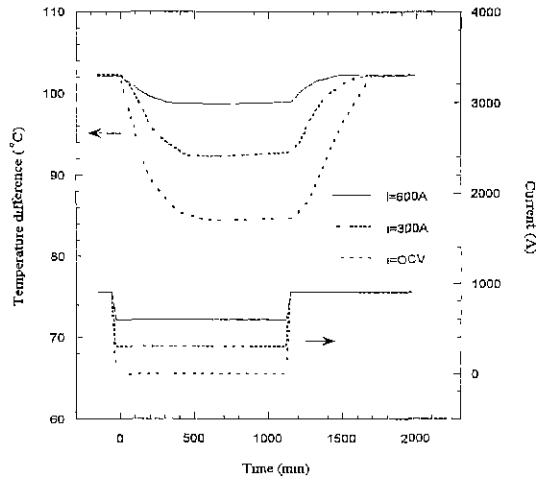


Fig. 11. Effects of various current load change on the inlet and outlet temperature of a 3 kW MCFC stack ($U_f/U_{ox}=40/40\%$).

를의 전달함수를 다음과 같이 표현할 수 있었다.

$$\begin{pmatrix} \Delta T \\ \Delta P_a \\ \Delta P_c \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1.000 & 0.4091 & 0.6420 \\ \frac{11378s+1}{2s+1} & \frac{10012s+1}{s+1} & \frac{10240s+1}{s+1} \\ \frac{-0.2581}{2s+1} & 0.0 & \frac{-1.000}{s+1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I \\ U_i \\ U_{ox} \end{pmatrix}$$

전달함수를 보면 조작 변수에 대한 스택의 입·출구 온도는 차압에 비하여 매우 느리게 응답하고 연료 이용률과 공기 이용률에 대한 차압의 시상수는 본 시스템이 5장의 단위전지로 구성되어 있어 20장의 적층된 5 kW 스택의 40% 정도임을 알 수 있었다. 또한 전지 면적이 증가함에 따라 조작변수들의 변화에 대한 온도차 변화 시간이 증가함을 알 수 있다. 전극 면적의 증가로 스택의 입구 부분과 출구 부분의 온도 불 균일성을 해소하는데 시간이 더욱 많이 걸림을 알 수 있다. 5 kW 스택에 비하여 연료 이용률과 공기 이용률의 스택 내부의 온도차에 대한 영향이 크게 나타난 것은 5장으로 구성되어

Table 6. Effects of various fuel and air utilization on the temperature difference of a 5 kW MCFC stack.

i (mA/cm ²)	U_f, U_{ox}	DT (T _{out} -T _{in})	i (mA/cm ²)	U_f, U_{ox}	ΔT (T _{out} -T _{in})
150	20%	130.0°C	100	40%	89.2°C
150	25%	133.5°C	100	50%	96.0°C
150	30%	136.65°C	100	60%	102.3°C
150	35%	140.0°C	100	70%	108.6°C
150	40%	143.0°C	100	80%	115.2°C

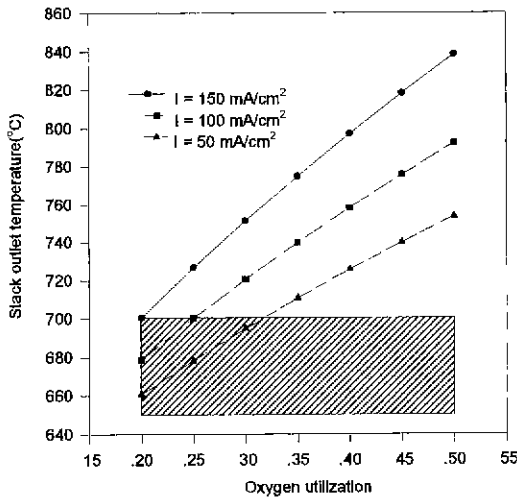


Fig. 12. Plot stack outlet temperature vs air utilization for various current densities operated in normal pressure and without gas recycle.

어 스택 자체의 열용량이 작기 때문이다. 3 kW 스택인 경우 전류밀도 150 mA/cm². 연료 이용률과 공기 이용률이 각각 40%인 조건에서 스택 내부의 온도차는 102°C였으며 30%의 공기 이용률과 40% 연료 이용률 조건에서는 스택 내부의 온도차는 98.8°C였다.

2-2-3. 대면적 MCFC 시스템 운전조건 분석

용융탄산염형 연료전지 시스템은 이미 상용 소프트웨어인 ASPEN PLUS를 이용하여 연료전지 스택과 전체 열량 수지 등 두 개의 In-line FORTRAN 블록을 이용하여 묘사하였다⁷⁾. 이러한 묘사를 통하여 정상상태의 스택을 하나의 단열체로 가정하면 열역학 1법칙에 의하여 스택에 가해진 열량과 스택에서 발생된 전기량을 기준으로 스택의 출구 온도를 계산할 수 있다⁸⁾. Fig. 12는 상압 운전 시에 공기 이용률에 따른 전류밀도 변화와 스택의 내부 온도를 나타낸 것이다. Fig. 12에서 빗금친 부분은 운전 가능한 스택의 허용 온도를 나타낸 것으로 스택의 입구 온도가 580°C인 경우 최대 120°C의 온도차까지 허용 가능한 운전범위는 공기 이용률을 2030%선에서 유지하고 스택의 출구 온도는 650~700°C로 유지하는 좁은 영역에서만 국한된다. 또한 공기극 가스의 이용률이 30% 미만인 경우 연료극과 공기극의 유량이 최대 10배까지 차이가 생기므로 압력 차가 증가하게 되어 차압 문제가 발생하며 주어진 설비를 이용하여 공기극의 공기량을 20% 이하로 유지할 경우에는 부대 설비의 용량 선정에도 적정 범위의 운전에 많은 제약이 따르게 된다. Fig. 13은 가압 운전에 있어서 공기극 가스의 리사이클을 증가시킬 때 각각의 부하에 따른 스택 출구 온

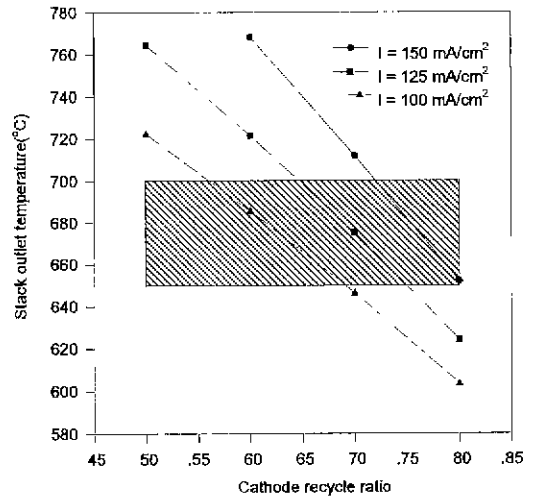


Fig. 13. Plot stack outlet temperature vs cathode recycle ratio for various current densities with anode recycle ratio 80%.

도를 나타낸 것이다. 리사이클량을 증가시키면 MCFC 스택 내에 냉각제인 공기량이 증가하여 스택 출구의 온도는 감소하게 된다. 가압 운전에 있어서 스택의 출구 온도가 650~700°C로 유지되는 경우 운전할 수 있는 공기극의 리사이클율의 범위는 55%~75%로 상압 운전보다 운전 범위가 증가함을 알 수 있다.

3. 결 론

3-1. 대면적 MCFC 시스템 정상상태 특성 분석

대면적 MCFC 스택의 정상상태 특성을 분석하기 위하여 조작변수로서 전류밀도(부하량), 연료 이용률, 공기 이용률을 선택하였으며 조절변수로는 스택 내의 최대 온도차, 스택 입구의 연료극 차압과 공기극 차압을 선택하였다. 이러한 조작변수와 조절변수의 정상 상태 이득을 행렬을 분석해 본 결과 스택 내의 최대 온도차는 전류밀도로 조절할 수 있으며 연료극의 차압은 연료 이용률, 공기극의 차압은 공기 이용률로써 조절할 수 있었다. 또한 상대 이득 행렬을 통한 조건수는 5 kW 스택인 경우 2.4501, 3 kW 스택인 경우 2.4433으로 비교적 안정된 시스템임을 보였다.

3-2. 대면적 MCFC 시스템 동특성 분석

대면적 MCFC 스택의 동특성을 해석한 결과 조작변수와 조절변수의 영향성은 시간 지연항이 없는 전형적인 1차 시스템의 특성으로 나타났고 연료 이용률은 공기극 차압에 대해 공기 이용률은 연료극 차압에 대해 전

혀 영향을 미치지 않았다. 또한 스택 내부의 온도차에 대한 시상수는 시간 단위로 나타났다. 조작변수와 조절 변수는 3×3 행렬의 전달함수로 표현되었으며 상호 연계성이 있는 것으로 분석되었다. 시스템에 작용하는 외란 변수로는 연료 및 공기량에 따라 스택 입구의 온도 (580°C)가 변화되었고 스택의 출구 부분의 압력 차가 대기압과 차이를 보였다.

3-3. 대면적 MCFC 시스템 운전 조건

스택 내부의 최대 온도차를 100°C 이하로 유지하기 위해서는 부하량을 줄이는 방법으로 5 kW 스택인 경우 전류밀도를 100 mA/cm²로 낮추고 연료 및 공기 이용률을 55%까지 높여서 운전이 가능함을 보였다. 냉각제의 유량을 증가시키는 방법으로 가압 운전을 이용한 recycle 을 할 경우 상압 운전에 비해 운전 범위가 광범위해짐을 보였다. 이러한 운전 조건은 운전 시 외란의 영향이 전혀 없다는 가정 하에 이루어진 것으로 갑작스런 유량의 변동, 예열기의 고장에 의한 스택 입구 가스의 온도 감소 등 외란이 발생 시에는 시스템 제어를 통하여 외란을 제거할 수 있으며 다중 입·출력 제어인 경우 조작변수 및 조절변수의 상호 연계성을 제거하기 위해서는 모델 예측 제어(MPC) 및 연계 제거기를 이용한 다중 입·출력 비례-적분(Proportional-Integral) 제어기 등을 적용해야 할 것으로 고려된다.

대면적 MCFC 스택의 경우 단위전지와는 다르게 스택 내부의 온도차가 많이 발생하였으며 스택에 대한 동특성 분석의 결과를 통하여 대면적 스택의 경우 다중 입·출력 제어가 필요하며 조작변수와 조절변수 상호간의 연계성을 제거하기 위해서는 연계 제거기가 요구됨을 살펴보았다. 이러한 분석은 향후 대면적 MCFC 스택에 대한 제어 구조 설계 및 운전 모드 설정에 중요한 역할을 할 것으로 기대된다.

사용기호

- i : current density, mA/cm²
- Q : heat generated from stack, kJ/mol
- F : Faraday constant, 96,487 C/equiv.
- IR : internal resistance,
- T : temperature. °C
- K : steady state gain
- S : entropy
- n : number of moles
- C : matrix of controlled variables
- M : matrix of manipulated variables
- I : identity matrix

Greek Symbols

- Δ : difference
- Λ : relative gain array
- λ : relative gain
- η : overpotential
- α : eigen value
- σ : singular value

Subscripts and Superscripts

- a : anode
- c : cathode
- f : fuel
- ox : oxidant
- in : inlet
- out : outlet
- T : transpose

참고문헌

1. 임희천 등: “5 kW급 외부개질형 MCFC 스택 구성 및 운전특성 시험결과”, 전력연구원 기술보고서 TM.97TJ38.P1999.34
2. 남석우 등: “1.5 kW급 용융탄산염 연료전지 스택의 성능 분석”. 에너지공학, 8(1) 23(1990).
3. 고준호: “MCFC 특성 해석 및 성능 예측을 위한 모델과 전산 모사 코드 개발 결과”, 전력연구원 기술보고서 TM.97TJ38.P1999.150
4. Seborg, Edgar, Mellichamp. “Process Dynamics and Control”. John Wiley & Sons, Inc. (1989).
5. Fujimura, H., Kobayashi, N. and Ohtsuka, K.: 일본기계학회논문집. 57(535), 825 (1991).
6. Luyben, W.L and Vinate. C.: Experimental Studies of Distillation Decoupling, Kem. Teollisuus 19, 499 (1972)
7. 강병삼 등: “ASPEN PLUS를 이용한 7 kW 용융탄산염 연료전지 시스템의 공정모사 및 연료이용률 분석”, 에너지공학. 8(1). 85 (1999).
8. 강병삼: “25 kW MCFC 시스템 공정 모사를 통한 운전 모드 검토 및 분석”, 전력연구원 기술보고서 TM.97TJ38.P1999.239
9. Soares, G.E. and Kosanovich, K.A.: “Parameter and State Estimation of a Proton-Exchange Membrane Fuel Cell Using Sequential Quadratic Programming”, Ind. Eng. Chem. Res. 36, 4264 (1997).
10. Shing-Jia Shiu and Shyh-Hong Hwang: “Sequential Design Method for Multivariable Decoupling and Multiloop PID Controllers”, Ind. Eng. Chem. Res. 37, 107 (1998).

11. Daw-Shang Hwang and Pau-Lo Hsu. "A Practical Design for a Multivariable Proportional-Integral Controller in Industrial Applications", *Ind. Eng. Chem. Res.* 36, 2739 (1997).
12. Watanabe 등: "Power Generation Test of 6 kW class MCFC Stack -(Part 2) Gas Recycle Test-". CRIEPI 보고서 연구보고(W89046), 13 (1990).