

500W급 연료극 지지체 평판형 SOFC 스택의 운전특성

임탁형*, 송락현, 신동열, 양정일, 정현, I.C. Vinke

Operation Characteristics of 500W Class Anode Support Planar SOFC Stack

Tak-Hyoung Lim, Rak-Hyun Song, Dong-Ryul Shin, Jung-Il Yang, Hun Jeong, I. C. Vinke

Abstract 본 연구는 독일 울리히 연구소에서 도입된 면적 200mm*200mm의 연료극 지지체 평판형 SOFC 셀 및 금속 분리판 5장을 적층하여 500W급 SOFC 스택을 제작하고, 이러한 스택의 운전특성을 분석한 연구이다. 도입된 500W급 SOFC 스택은 가스터빈-연료전지 하이브리드 시스템에 사용되는 5kW급 SOFC 스택의 예비실험을 위한 것으로서, 본 연구의 목적은 상압 운전특성을 바탕으로 외국에서 시도된 적이 없는 평판형 SOFC 스택의 가압 운전기술을 확보하는 것이다. 이러한 목적을 위해 본 연구에서는 상압형 500W급 SOFC 발전시스템에 대한 구성과 설계, 전반적인 운전 특성평가 (5셀 스택 운전, 연료 전환 ($H_2 \rightarrow$ pre-reformed gas), 500시간 연속운전 등)가 이뤄졌다.

Key words SOFC, ambient pressure operation, stack, anode support, planar type

* 한국에너지기술연구원, 신에너지연구부, 신연료전지연구센터

☐E-mail : ddak@kier.re.kr ☐Tel : (042)860-3608, 3578, 3015 ☐Fax : (042) 860-3309

1. 서론

고체산화물 연료전지(Solid oxide fuel cell : SOFC)는 연료 기체가 소유하고 있는 화학에너지를 전기화학반응에 의해 직접 전기에너지로 변화시키는 에너지 변환 장치이다. 고체산화물 연료전지의 특성은 인산형 및 용융탄산염형 연료전지 등 다른 연료전지에 비해 효율이 높고 공해가 적으며, 연료개질기가 필요 없고, 연료전지-가스터빈 하이브리드 복합발전이 가능하다는 장점을 갖고 있다¹⁾.

현재 전 세계적으로 연료전지-가스터빈 하이브리드 시스템을 제작하고 운전한 나라는 미국으로서, 지멘스 웨스팅하우스

사는 220 kW급 혼합시스템 (연료전지 200 kW급-마이크로가스터빈 20 kW급)을 3기압에서 성공적으로 운전하여 전기발생 효율을 53% 달성했다²⁾. 또한, Fuel Cell Energy 사에서도 상압형으로 유사한 시스템을 제작하여 운전한 경험을 갖고 있다. 그리고 일본의 경우 혼합발전 시스템을 위해 미츠비씨 중공업에서 가압형 SOFC 를 개발했으며, 유럽은 롤스로이스와 울리히 연구소가 주축이 되어 SOFC 스택 개발을 추진하고 있다. 그러나, 현재 개발되는 SOFC 스택들은 주로 상압형으로 개발되고 있는데, 가스터빈과 연계시킨 하이브리드 발전 시스템을 운전하기 위해서는 SOFC 스택의 효과적인 가압 운전 기술과 가스터빈과 효율적으로 연계시키는 방안에 대해 많은 연구노

력이 집중되고 있다³⁾.

실제 상압 운전에서 발생하는 않는 여러 가지 문제점들이 가압 운전에서 나타날 수 있으며, 가압 스택 운전을 통해 상압형과 가압형 스택의 차이점과 스택 설계상의 개선점이 도출 될 수 있을 것으로 예상된다. 또한, 여러 가지 구성소재의 문제점, 특히 가압 조건에서 발생하는 가스 누출 현상의 방지책 마련 등이 있어야 할 것이다⁴⁾. 특히 중요한 것은 가압 스택의 운전 시스템 최적화 및 가스 압력제어의 효과적인 방안, 가압 임계조건 선정 등이 이루어져야 할 것이다⁵⁾.

따라서, 본 연구의 목적은 상압형으로 개발된 독일 울리히 연구소의 SOFC 스택을 도입해 운전시스템을 설계 및 제작하고, 연료전지-가스터빈 하이브리드 시스템 용으로 제작된 발전시스템에서 SOFC 스택을 상압 및 가압 운전하는 것이다. 이러한 목적을 달성하기 위해 5kW급 SOFC 스택의 도입 전에 예비 실험으로서 500W급 SOFC 발전시스템에 대한 구성과 설계, 그리고 도입된 독일 울리히 연구소의 500W급 SOFC 스택에 대한 전반적인 운전 특성평가(5셀 스택 운전, 연료 전환 ($H_2 \rightarrow$ pre-reformed gas), 500시간 연속운전 등)가 본 연구를 통해 이뤄졌다.

2. 실험

SOFC 스택 발전시스템의 기본 구성설비는 로, 반응기체 공급, mechanical loading system, 계장으로 이뤄져 있는데 Fig. 1 에 잘 나타나 있으며, 독일에서 도입된 500W급 SOFC 스택은 Fig. 2에 잘 나타나 있다⁶⁾.

2.1. 로 (furnace)

스택의 최초 가열, 환원, 운전 시에 사용되는 로는 전통적인 후드형태로서 최대상승 온도는 1280 oC, 사용전력은 20 kW 이다. 가열은 후드의 4벽 열선을 통해 이뤄지며, 후드 자체는 크레인을 이용해서 탈/부착이 이뤄진다. 로 내부는 스택이 존재해야 하기 때문에, 600*700 mm의 면적의 내부공간이 확보 되어야 하며, 후드 내의 평균 높이는 벽면에서 1050 mm, 중앙에서 1130 mm 이다. 스택 적층을 위한 높이는 65 cm 정도이며, 로 내부 아래 부분에 사용되는 벽돌은 refractory clay로 만들

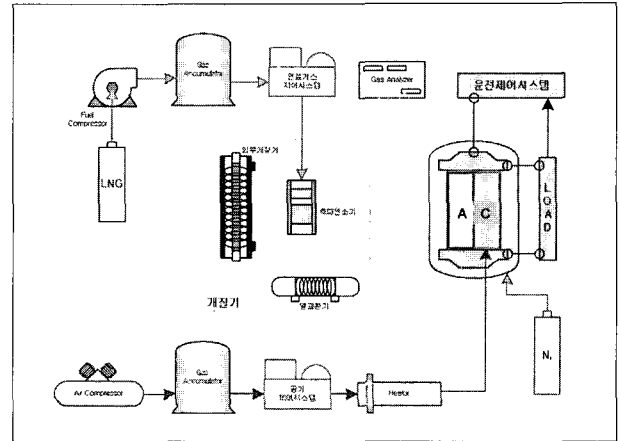


Fig. 1 500W 급 SOFC 발전시스템

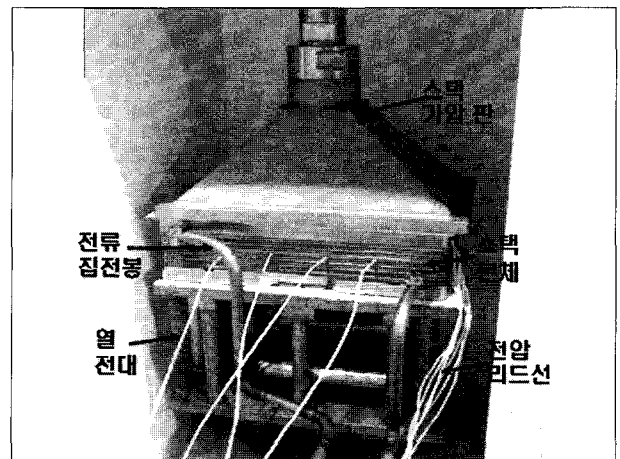


Fig. 2 500W급 SOFC 스택

어진 벽돌로서 반응기체의 입/출구와 열전대/전압 측정 wire 등 다양한 부분들이 관통하게 된다⁷⁾.

2.2. 스택 mechanical loading system

스택에 다양한 mechanical 로드를 주기 위해 load cell 시스템이 이용됐으며, mechanical load는 다양하게 변화될 수 있다. 스택이 조립된 후 일반적으로 200 kg의 로드가 스택에 주어지며, glass ceramic 이 자리를 잡기 위해 적당한 온도로 가열되는 동안 일정하게 mechanical load 가 유지된다. 적정온도에 도달한 후 1 시간이 지나면, 무게는 520 kg 으로 증가되며, 그 때 이후에는 일정하게 무게가 유지된다. 20*20 cm² 셀

이 장착된 스택의 경우 약 200 kg 의 최소 로드가 필요하다. Mechanical load 시스템 대부분은 Inconel 로 만들어졌으며, 스택과 무게 지레 시스템 사이의 전기적인 절연을 위해서 알루미늄으로 만들어진 round disc 가 사용된다.

2.3. Gas 공급 설비

스택은 로 내부에서 adapter plate 와 top plate 사이에 위치하게 되는데, adapter plate에서 기체 공급 pipe 가 연결된다. Adapter plate는 DIN 1,4742 합금으로 만들어졌으며, 스택과 바닥 판은 유리-세라믹 밀봉재를 이용해 실링이 이뤄졌고, 스택 바닥 판과 adapter plate는 mica로 실링이 이뤄졌다. Adapter plate는 기체공급 설비와 스택을 연결해주며, 2개의 연료 주입구와 1개의 공기 배출구, 2개의 공기 주입구와 1개의 연료 배출구로 구성돼 있다. 연료/공기 흐름은 스택 내에서 반대방향 흐름을 갖는다. SOFC 스택 운전을 위해 공기극에서 산화제로서 공기, 연료극에서 연료기체로서 수소 및 메탄을 이용한다. 수소 및 메탄의 가습화는 계회로 전압(OCV)을 고정하기 위해 필요한데, 연료 주입가스의 경우 3-10% 정도 주입되어야 한다. 메탄은 가열 중에 코킹 현상을 방지하기 위해 증기/탄소(S/C) 비율을 1.5-2 정도로 유지해야 한다. Ar는 비활성 기체로서 사용될 수 있으며, 대체가스로서 N₂도 이용 가능하다. Ar 바탕에 4-5% 의 H₂ 는 가열/냉각 사이클 도중 연료극이 재산화되는 것을 방지하기 위해 연료전지 연료극에 퍼지 가스로서 사용되며, 비상시에도 사용될 수 있다. 연료 및 공기유량은 MFC (mass flow controller)로 조절되는데 최초가열, 환원, 운전, 냉각 및 가열 등에 이용될 수 있는 범위로 조절된다. 연료 및 공기는 스택에 공급되기 전에 예열기로 가열되며, 연료에 수분을 공급하기 위해 steam generator 시스템이 부착되어서 3-10 %의 수분을 공급한다. 스택으로부터 배출되는 연료 및 공기 라인에 chiller 로 냉각된 후 배출구로 배출된다. 동시에 물은 응축되고 기체 흐름으로부터 분리되어 drain line으로 배출된다.

2.4 계장 (Instrumentation)

selected interconnect plate 에 thermocouple (지름: 1mm)이 삽입되고, 온도가 측정되며, 스택 내의 온도 분포는 모

든 3 방향에서 측정된다. 전압 리드는 spot-welding 되며, current rod (지름이 10 mm)는 볼트 및 너트를 이용해서 스택의 맨 위 및 아래 판에 고정된다. thermocouple, 전압 리드, 압력 측정기로부터의 모든 결과들은 연속적으로 모니터링 되며, 분석을 위해 컴퓨터 하드디스크에 저장된다.

2.5 500W 급 SOFC 스택의 운전 절차 (Operation procedure of 500W class SOFC stack)

독일에서 도입된 울리히 500W급 SOFC 스택은 다양한 부품들로 이루어져 있는데, 이러한 부품을 조립해 스택을 구성하며, 스택 운전을 위한 장비들을 확인한다. 조립 후 공기극에 공기, 연료극에 질소를 주입한 후 스택을 가열한다. 이러한 가열의 주된 목적은 밀봉재로 사용된 글래스 세라믹의 고정을 위해서이며, 정해진 단계 및 시간에 따라 가열이 진행된다. 가열 후 연료극의 환원을 위해 수소를 단계적으로 주입한다. 완전한 환원은 전체 셀 전압을 모니터링 한 후 확인하며, 셀 손상의 확인을 위해 수소/공기/스팀 양을 변화시킨다. 그리고 수소를 주입해 상압 수소운전을 하며, 개질기를 연결해 상압 개질가스 운전을 수행한다⁹⁾. 이러한 운전 절차는 Fig. 3에 나타나 있다.

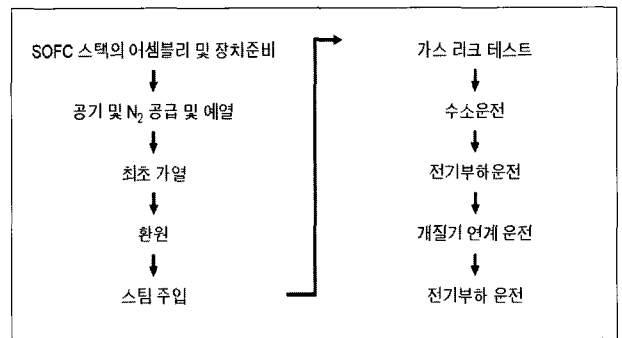


Fig. 3 500W급 SOFC 스택의 운전 절차

3. 실험 결과

독일 울리히 연구소에서 도입한 500W SOFC 스택은 5kW 급 SOFC 스택 운전에 대한 훈련 및 KIER에 설치된 SOFC 발

전시스템의 설계 및 제작 후의 검증실험을 위해 도입됐다. Fig. 4-1, 4-2 는 독일에서 도입된 500W급 SOFC 스택의 셀 당 전압 및 전력량을 나타낸 전류-전압 및 전류-전력 특성 곡선이다. 반응조건으로는 연료로서 수소가 20 l/min가 공급됐으며, 3%의 수분이 연료에 주입됐다. 산화제로서 공기 40 l/min 가 공급됐으며, 스택 내의 온도는 약 800℃이고, 활성면적은 361 cm²이다. 수소를 연료로 사용했을 경우 전체 SOFC 스택은 0.53 A/cm²의 전력밀도에서 약 700W의 출력이 나오는 것으로서 비교적 안정적인 SOFC 스택 성능을 나타내고 있다. 전반적으로 셀 전체가 균일한 성능을 나타내고 있지만, 5번 셀 (bottom cell)이 감소된 성능을 나타내고 있는데, 이것은 스택 적층 도중 발생한 충격 등으로 인해 bottom 셀 성능이 감소된 것으로 생각된다.

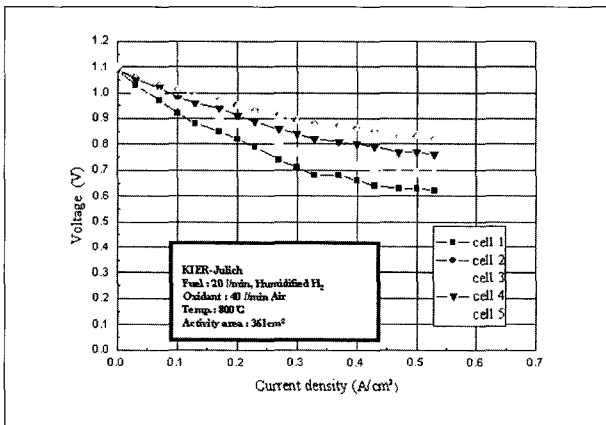


Fig. 4-1 500W급 SOFC 스택의 운전특성 (전류_전압: 수소 주입 운전)

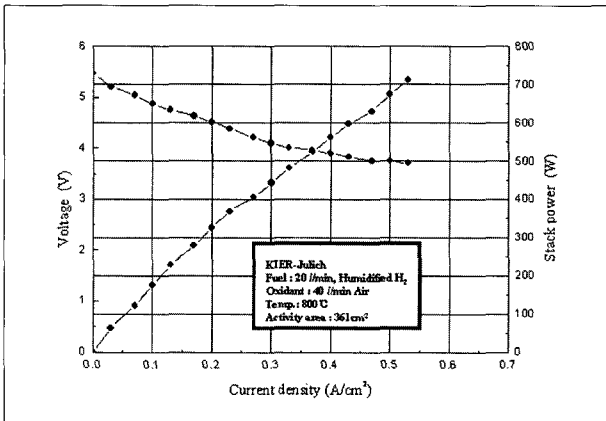


Fig. 4-2 500W급 SOFC 스택의 운전특성 (전류_전력: 수소 주입 운전)

Fig. 5-1, 5-2 는 연료로서 수소 대신 개질가스를 공급했을 경우에 따른 전류-전압 및 전류-전력 수행성 곡선을 나타낸 것이다. 반응조건으로는 수소=18 l/min, CO=2.9 l/min, CO₂=2.3 l/min, H₂O=7.9 l/min 의 개질가스를 주입했으며, 산화제로서 공기가 40 l/min 주입됐다. 또한, 스택 내부의 온도는 800℃, 활성면적은 361cm²이다. 수소 대신 개질기와 연결해 개질 가스를 연료로 사용했을 경우 전체 SOFC 스택은 약 350W 정도의 출력을 나타내는 것으로서 수소를 연료로 사용했을 경우보다 약 50% 정도의 출력이 나타내는 것을 확인할 수 있었다. 이러한 결과는 독일 울리히 연구소의 결과와 유사한 경우이며, OCV 의 경우 수소 운전 때보다 개질 가스 공급시에 연료에 수분양이 증가했기 때문에 더 낮은 값을 나타내고 있다. 역시 수소 주입 운전 때와 유사하게 셀 5번 (bottom 셀)이

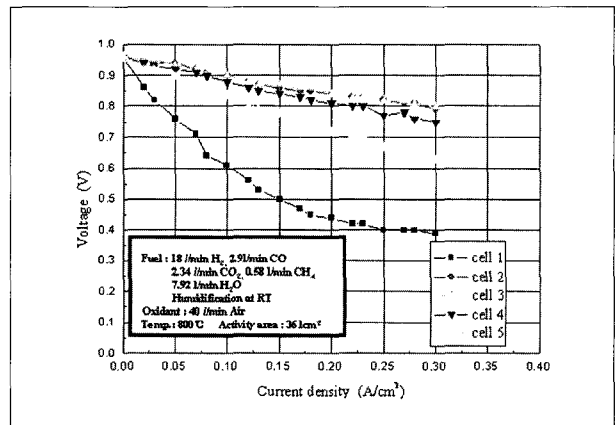


Fig. 5-1 500W급 SOFC 스택의 운전특성 (전류_전압: 개질가스 주입 운전)

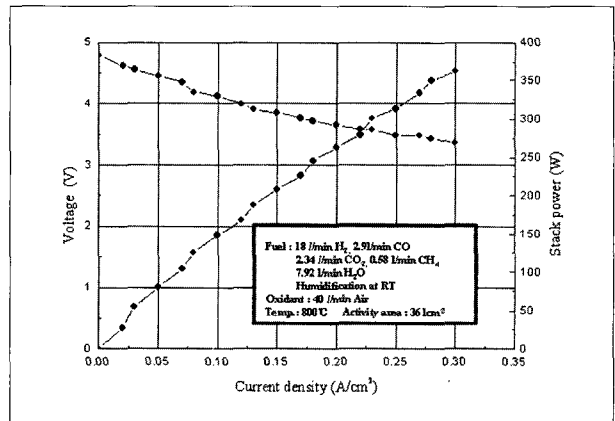


Fig. 5-2 500W급 SOFC 스택의 운전특성 (전류_전력: 개질가스 주입 운전)

가장 감소된 성능을 나타내고 있다.

Fig. 6은 500W급 SOFC stack 을 500시간 동안 계속된 연속운전 결과를 나타낸 그림이다. 전자부하를 계속적으로 108 A 걸어주면서 연료로는 수소 20 l/min, 산화제로는 공기 40 l/min 을 공급했다. 그림에서 보면 500 시간까지 비교적 안정적인 SOFC 수행성이 나타나고 있지만, 약 500 시간 후에 약 10 %의 성능감소 현상이 나타나고 있다. 이러한 성능 감소의 원인으로는 스택 적층 도중에 생성된 금속 조각들이 셀 과 셀 사이에 위치하게 된 후 전자 부하를 걸어줌으로서 short circuit 이 생겨, 그에 따른 열들이 계속적으로 발생하게 된다. 따라서, 장시간의 연속운전으로 인해 local heating이 가속화 되면 셀 내에 생성된 미세한 크랙들이 성장하고, 이러한 크랙 들을 통해 연료 및 산화제의 cross over 로 local heating이 점차 더 가속화됨으로서 스택 성능이 감소한 것으로 생각된다⁹⁾.

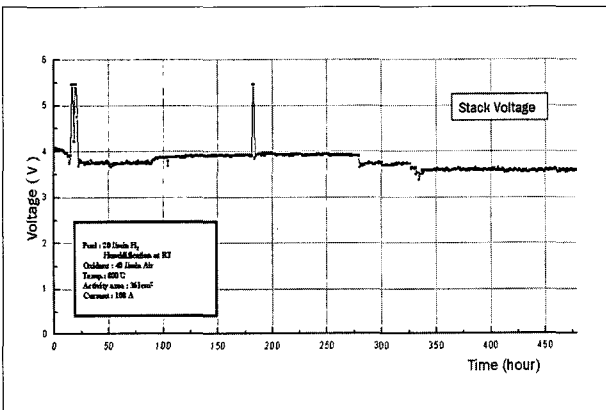


Fig. 6 500W SOFC stack 의 연속운전 성능

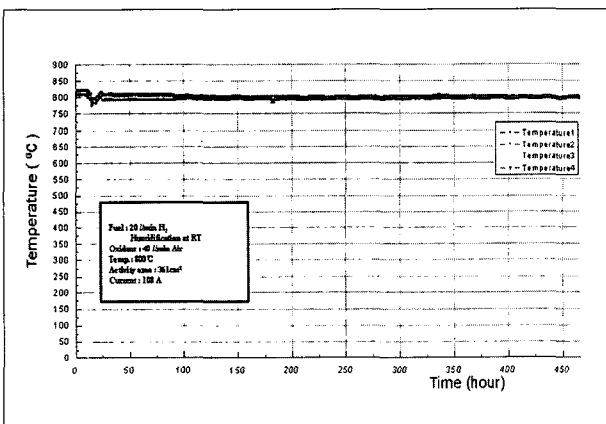


Fig. 7 500W SOFC 스택의 연속 운전 온도 분포

Fig. 7은 500 시간의 연속운전 동안 500W급 SOFC 스택의 온도 분포를 나타낸 그림이다. 그림에서 보면 처음 스택은 운전하고 나서부터 500 시간 동안 비교적 균일한 온도 분포가 얻어짐을 확인할 수 있다.

4. 결론

본 연구에서는 독일 울리히 연구소에서 도입된 면적 200mm*200mm의 연료극 지지체 평판형 SOFC 셀 및 금속 분리판 5장을 적층하여 500W급 SOFC 스택을 조립하고, 연속운전을 수행하여 운전특성을 분석했다. 독일에서 도입된 SOFC 스택은 상압 운전 조건의 경우 매우 안정된 성능특성을 나타냈으며, 개질기 연계 운전 시에도 안정적인 성능을 나타냈다. 또한, 독일 울리히 연구소의 SOFC stack 에 대한 상압 운전절차를 습득했으며, 상압형 SOFC 발전시스템에 바탕을 둔 가압형 시스템에 대한 전반적인 운전기술을 획득할 수 있었다.

References

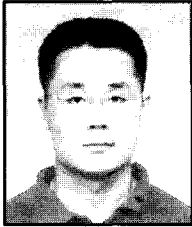
- (1) S. C. Singhal and K. Kendall, High Temperature Solid Oxide Fuel Cell: Fundamentals, Design and Applications, Elsevier Science(2003).
- (2) A. J. Appleby, F. R. Foulkes, Fuel Cell Handbook, van Nostrand Reinhold, New York. 1989, pp. 124-129.
- (3) J. Larminie, A. Dicks, Fuel Cell Systems Explained, Second ed., John Wiley & Sons Ltd., New York, 2003, pp. 1435-1439.
- (4) S. E. Veyo, W. L. Lundberg, S. D. Vora, and K. P. Litzinger, Tubular SOFC hybrid power system status, in: ASME Paper GT2003-38943, 2003.
- (5) G.D. Agnew, M. Bozzolo, R.R. Moritz, S. Berenyi, The design and integration of the Rolls-Royce fuel cell systems 1 MW SOFC, in: ASME Paper GT2005-69122, 2005.
- (6) J. H. Kim, S. S. Yang, and D. S. Lee, Development of high efficiency gas turbine/fuel cell hybrid power

generation system, International workshop on fuel cell and fuel cell hybrid systems, 46, 2004, pp. 243-251.

(7) H.P. Buckkremer, U. Diekmann and D. Stover, in B. Thorstensen (ed.), Proc. 2nd Eur. SOFC Forum 1996, U. Bossel, Mogenacher-strasse 2F, CH-5452 Oberrohrdorf, Switzerland, 1996. pp. 221-228.

(8) L.G.J. de Haart, K. Mayer, U. Stimming, and I. C. Vinke, Operation of anode-supported thin electrolyte film solid oxide fuel cells at 800 oC and below, J. Power Sources, 71 (1998) 302-305.

임 탁 형



1997년 한국과학기술원 화학공학과 공학사
1999년 한국과학기술원 생명화학공학과 공학석사
2004년 한국과학기술원 생명화학공학과 공학박사

현재 한국에너지기술연구원 신연료전지연구센터 선임연구원
(E-mail ; ddak@kier.re.kr)

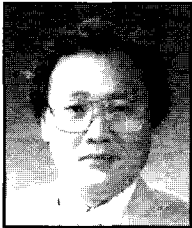
송 락 현



1984년, 부산대학교 금속재료공학과 공학사
1986년, 한국과학기술원 재료공학과 공학석사
1989년, 한국과학기술원 재료공학과 공학박사

현재 한국에너지기술연구원 신연료전지연구센터 책임연구원
(E-mail ; rhsong@kier.re.kr)

신 동 열



1972년 고려대학교 전기공학과 공학사
1976년 고려대학교 전기공학과 공학석사
1986년 고려대학교 전기공학과 공학박사

현재 한국에너지기술연구원 신연료전지연구센터 책임연구원
(E-mail ; drshin@kier.re.kr)

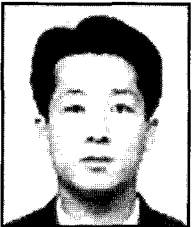
정 현



1983년 서울대학교 화학공학과 공학사
1985년 서울대학교 화학공학과 공학석사
1991년 워싱턴주립대학교 화학공학과 공학박사

현재 한국에너지기술연구원 합성석유연구센터 책임연구원
(E-mail ; jungh@kier.re.kr)

양 정 일



1995년 고려대학교 화학공학과 공학사
1997년 고려대학교 화학공학과 공학석사
2005년 고려대학교 화학공학과 공학박사

현재 한국에너지기술연구원 합성석유연구센터 선임연구원
(E-mail ; yangji@kier.re.kr)

Izaak C. Vinke



현재 독일 옐리히 연구소 IWV-3: Energy Process Engineering 연구원
(E-mail ; i.c.vinke@fz-juelich.de)