



[2016-12-FC-012]

평판형 고체산화물 연료전지 스택의 내부개질 특성 연구

최영재^{1)*} · 안진수¹⁾ · 이인성¹⁾ · 배홍열¹⁾ · 문지웅¹⁾ · 이종규²⁾

Study on Internal Reforming Characteristic of Planar Type Solid Oxide Fuel Cell Stack

Youngjae Choi^{1)*} · Jinsoo Ahn¹⁾ · Insung Lee¹⁾ · Hongyoul Bae¹⁾ · Jiwoong Moon¹⁾ · Jonggyu Lee²⁾

Received 2 August 2016 Revised 2 August 2016 Accepted 22 November 2016

ABSTRACT This paper presents the performance characteristics of a planar type solid oxide fuel cell (SOFC) stack under various internal reforming and fuel utilization conditions. The Research Institute of Industrial Science & Technology (RIST) developed the 5-cell stack using a $20 \times 20 \text{ cm}^2$ anode supported planar cell with an active area of 324 cm^2 . In this work, current-voltage characteristic test, fuel utilization test, continuous operation, and internal reforming test were carried out sequentially for 385 hours at a furnace temperature of 700°C . The influence of fuel utilization and internal reforming on the stack performance was analyzed. When the 5-cell stack was tested at a current of 162A with a corresponding fuel utilization of 50~80% (internal reforming of 50%) and air utilization of 15%, the stack power was approximately 637~650W. Under continuous operation conditions, performance degradation rate was 1.89%/kh for 262 hours. The internal reforming characteristics of the stack were measured at a current of 162A with a corresponding fuel utilization of 60~80% (internal reforming of 50~90%) and air utilization of 15%. 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(연료이용율)

Nomenclature

η : efficiency, %
 P : stack power, kW
 Q : lower heating value of fuel, kW
 U : utilization, %

subscript

el : electrical
 f : fuel

- 1) PosFC PJT Team, Research Institute of Industrial Science & Technology (RIST) E-mail: yjchoi_rist@rist.re.kr
 Tel: +82-54-279-6606 Fax: +82-54-279-6399
- 2) Climate and Energy Research Group, Research Institute of Industrial Science & Technology (RIST)

1. 서론

고체산화물 연료전지(Solid Oxide Fuel Cell, SOFC)는 산소 이온전도성이 있는 고체산화물을 전해질로 사용하여 $600^\circ\text{C} \sim 1000^\circ\text{C}$ 의 고온에서 운전되는 연료전지로서 고효

을 발전 및 열병합발전이 가능하다. 또한 기존의 발전시스템에 비하여 SO_x와 NO_x의 배출량을 현저히 감소시킬 수 있어 친환경적인 저공해 발전이 가능하다는 장점을 가진다.^[1,2] 또한 SOFC는 고온(600°C~1000°C)에서 작동하기 때문에 연료극에서 수소 이외에도 메탄, 메탄올, 에탄올, 가솔린, 바이오가스 등과 같이 다양한 대체 연료도 사용이 가능하며 이에 대한 연구도 이루어지고 있다.^[3,4,5,6,7]

SOFC 발전시스템은 연료전지 스택, 연료극가스 및 공기극가스의 공급을 위한 유량제어기 및 송풍기, 탄화수소류 연료를 수소가 다량 함유된 가스로 전환시키는 개질기, 연료극가스 및 공기극가스를 고온으로 스택에 유입시키기 위한 열교환기, 스택 미반응 가스를 연소시키기 위한 연소기 등의 MBOP(Mechanical Balance of Plant)와 스택에서 나오는 직류전류를 교류전류로 변환시키는 전력변환기 및 제어시스템 등의 EBOP(Electrical Balance of Plant)로 구성된다.

SOFC 발전시스템의 발전효율을 높이기 위해서는 시스템에서 발생하는 열원을 효율적으로 사용하기 위한 열교환망 설계와 열손실을 최소화하는 것이 매우 중요하다. 일반적으로 스택에서 나오는 연료극의 미반응 가스는 연소기에서 연소되어 열교환기 및 개질기에 필요한 열을 공급하게 된다. 이때 시스템의 열교환망 구성방법에 따라 개질기에 공급되는 열량이 다르며 스택의 연료극에 유입되는 개질가스의 조성도 달라진다. 또한 열교환망 최적설계를 통해 SOFC 발전시스템을 제작하더라도 각종 장치 및 배관에서 열손실, 운전조건 변경 등의 요인으로 개질기에 공급되는 열량에 변화하게 되고 스택에 공급되는 연료극 가스의 조성도 변하게 된다. 따라서 SOFC 발전시스템을 제작함에 있어 연료극가스의 조성 및 유량변화에 따른 스택의 특성을 분석하는 것이 중요하다.

본 연구에서는 400cm²급 연료극지지체 평판형 셀을 적용한 5셀 스택을 제작하여, 다양한 내부개질을 및 연료이용율 조건에서 스택의 특성을 조사하였다. 이를 위해 전류-전압 특성, 연료이용율에 따른 스택 특성, 연속운전 특성 및 내부개질에 따른 스택 특성 실험을 순차적으로 수행하여 스택의 전압, 출력 및 효율 등의 다양한 성능을 살펴 보았다.

2. 실험방법

2.1 스택 제작

SOFC 스택은 Fig. 1과 같이 셀, 집전체, 밀봉재 및 분리판 등의 구성요소로 이루어지며, 본 연구에서는 SOFC 셀은 크기가 20×20cm, 반응면적이 324cm²인 연료극 지지체형 평판형 셀을 테이프캐스팅 공정으로 제작하여 사용하였다. 연료극 집전체는 Ni mesh를 사용하였고, 공기극 집전체는 CoNi 합금 폼을 사용하였다. 밀봉재는 유리계의 고온 밀봉재를 사용하여 디스펜싱 공정을 통해 제작하였고 분리판은 STS400계열의 금속소재를 사용하여 에칭 및 절단/용접하여 제작하였다.

SOFC 스택은 Fig. 2와 같이 공기극가스와 연료극가스 흐름을 교차흐름(cross-flow) 방식으로 설계 및 제작하였고, 분리판은 스택온도 700°C 및 전류 162A(500mA/cm²) 인가 조건에서 연료이용율 50%, 공기이용율 15%에 해당하는 연료극가스 및 공기극 가스가 흐를 때 분리판 내부에서의 가스유동이 균일하고 압력손실을 최소화 할 수 있도록 분리판의 가스채널부 및 매니폴드부를 설계하여 제작하였다. 제작된 셀, 집전체, 밀봉재 및 분리판 구성요소 및 스택 구조물을 순차적으로 적층하였으며 총 5셀을 적층하였다.

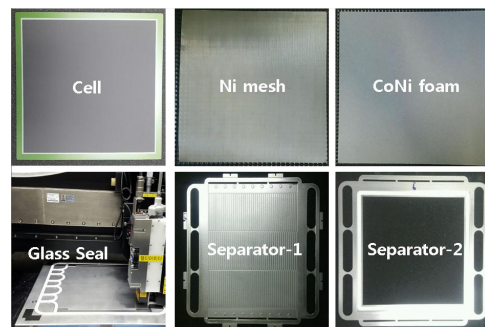


Fig. 1. SOFC Stack Elements

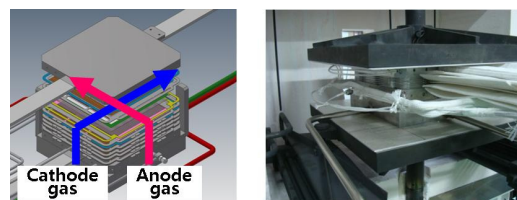


Fig. 2. Stack 3D design and 5-cell Stack

2.2 성능평가

스택 적층완료 후 전기로의 온도를 상온에서 스택 작동 온도까지 올리면서 전처리 단계와 연료극 환원단계를 69.5 시간동안 진행하였다. 전기로 온도 750°C에서 스택의 연료극 배관에 물 공급 없이 건조 분위기에서 수소 15 SLPM을 공급하고 공기극 배관에 공기 15 SLPM을 공급하였을 때 각 셀의 개회로전압(open circuit voltage)은 1,282V(상부 1번 셀), 1,285V(2번 셀), 1,292V(3번 셀), 1,287V(4번 셀) 및 1,300V(하부 5번 셀)로 정상 범위의 값을 보였다.

연료극 환원 완료 후 86시간부터 91.5시간까지 스택 초기 성능 평가(전류-전압 특성 및 연료이용율 변화에 따른 스택 성능)를 진행하였고 93시간부터 355시간까지 연속운전 성능평가 후 381시간까지 내부개질을 변화에 따른 스택 성능 평가를 순차적으로 실험하였다. 모든 성능평가는 전기로의 온도를 700°C로 고정한 상태에서 실시하였으며, 연료극에는 내부개질을 위한 수소, 메탄, 이산화탄소 및 물을 공급하고 공기극에 공기를 공급하면서 실험하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 스택 초기성능 및 연속운전 성능

3.1.1 전류-전압(I-V) 특성

스택의 전류-전압(I-V) 특성을 평가하기 위해 스택 인가전류 162A기준으로 연료극에는 연료이용율 50% 및 내부개질을 50%조건으로 수소, 메탄, 이산화탄소 및 물을 공급하고 공기극에는 공기이용율 15% 조건으로 공기를 공급한 후 스택에 전류를 0A에서 162A까지 증가시키면서 인가하여 스택 성능을 평가하였다. 전류를 증가시키면서 측정

Table 1. I-V characteristic - resulting values

전류 (A)	전류밀도 (mA/cm ²)	스택전압 (V)	스택출력 (W)
32.4	100	4,729	150.0
64.8	200	4,474	286.5
97.2	300	4,287	413.0
129.6	400	4,120	529.5
162.0	500	3,989	644.5

된 스택의 전압 및 출력은 Table 1 및 Fig. 3과 같다. 스택 인가전류 162A에서 스택 전압 3,989V, 스택 출력 644.5W 및 출력밀도 0.40W/cm²의 성능을 보였으며, 이를 통해 스택 집전구조 및 분리판 교차흐름 구조가 적합하게 설계되었음을 확인하였다.

3.1.2 연료이용율 변화에 따른 스택 성능

연료이용율 변화에 따른 스택 성능 변화를 알아보기 위해 전류 162A 및 공기이용율 15%로 고정하고 내부개질을 50% 기준으로 연료이용율을 50%에서 80%까지 5%씩 증가시키면서 스택의 전압 및 출력을 측정하였으며 연료이용율 별 연료극가스 및 공기극가스의 유량은 Table 2와 같다.

연료이용율에 따른 스택의 전압, 출력, 효율 및 셀 전압을 Table 3과 Fig. 4 및 Fig. 5에 나타내었다. 스택의 효율은 아래의 식 (1)과 같이 스택출력과 연료극가스 중 수소 및 메탄의 저위발열량 값을 이용하여 계산하였다.

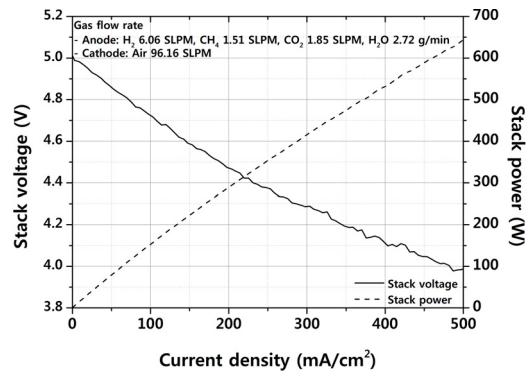


Fig. 3. I-V characteristic of 5-cell stack

Table 2. Gas flow rates at various fuel utilization conditions

연료 이용율 (%)	연료극				공기극
	H ₂ (SLPM)	CH ₄ (SLPM)	CO ₂ (SLPM)	H ₂ O (g/min)	Air (SLPM)
50	6.06	1.51	1.85	2.72	96.16
55	5.51	1.38	1.68	2.47	
60	5.05	1.26	1.54	2.27	
65	4.66	1.17	1.42	2.09	
70	4.33	1.08	1.32	1.94	
75	4.04	1.01	1.23	1.81	
80	3.79	0.95	1.16	1.70	

Table 3. Stack performance under various fuel utilization conditions

연료이용율 (%)	스택전압 (V)	스택출력 (W)	스택효율 (%)	Cell 1 전압 (V)	Cell 2 전압 (V)	Cell 3 전압 (V)	Cell 4 전압 (V)	Cell 5 전압 (V)
50	4.022	649.65	35.57	0.798	0.816	0.813	0.816	0.804
55	4.026	650.33	39.13	0.798	0.815	0.814	0.816	0.803
60	4.019	649.13	42.75	0.796	0.813	0.815	0.814	0.801
65	4.012	647.85	46.14	0.795	0.812	0.815	0.813	0.800
70	4.008	647.28	49.82	0.791	0.810	0.815	0.811	0.796
75	3.982	642.90	53.05	0.786	0.806	0.812	0.809	0.793
80	3.949	637.45	56.09	0.776	0.799	0.807	0.804	0.783

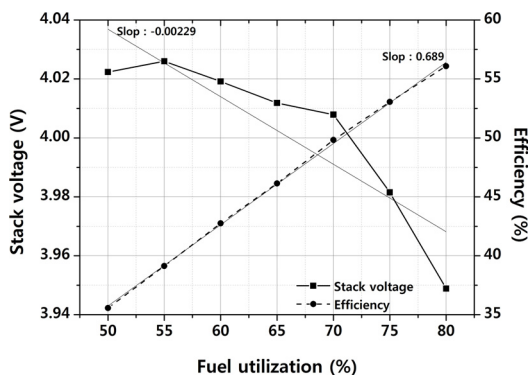


Fig. 4. Effect of fuel utilization – stack voltage and electrical efficiency

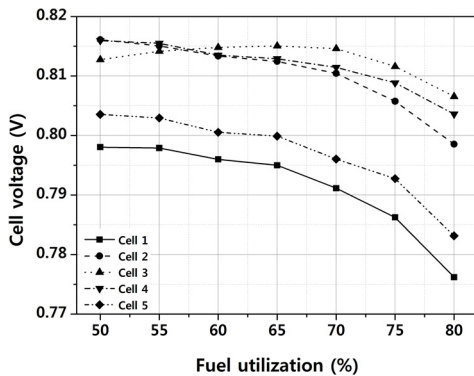


Fig. 5. Effect of fuel utilization – cell voltage

$$\eta_{el} = \frac{P}{Q_f} \times 100 [\%] \quad (1)$$

식 (1)의 계산에서 사용한 수소와 메탄의 저위발열량(60°F 기준)은 119.943kJ/g 및 50.036kJ/g이며, 수소와 메탄의 분자량은 2.016g/mol 및 16.043g/mol이고 Table 2에서 연료극가스 유량은 20°C, 1기압에서의 유량이다.

연료이용율 50% 및 80%에서의 스택전압은 4.022V 및 3.949V로 연료이용율 80%에서의 스택전압은 연료이용율 50%에서의 스택전압 대비 약 1.8% 감소한 것으로 측정되어 분리판의 가스유로 설계의 적합성을 확인하였다. 연료이용율에 따른 스택전압은 Fig. 4와 같이 연료이용율 50~80% 범위에서 $-2.29\text{mV}/U_f$ 의 감소율을 보였고, 연료이용율 70%를 기준으로 50~70%범위에서는 $-0.861\text{mV}/U_f$, 70~80% 범위에서는 $-5.91\text{mV}/U_f$ 로 연료이용율 70% 이상에서 성능변화율이 크게 나타났다. 연료이용율 변화에 따른 효율 변화는 연료이용율을 1% 높이면 효율이 0.689% 증가하는 것으로 평가되었다. 연료이용율 변화에 따른 스택 성능 평가시 각 셀의 전압은 Fig. 5와 같다. 대부분의 연료이용율에서 스택중앙에 위치한 3번 셀의 전압이 다른 셀들에 비해 가장 높았고 4번 셀, 2번 셀, 5번 셀 및 1번 셀 순으로 셀 전압이 높았으며 이것은 일반적으로 스택 중앙에서의 온도가 가장 높고 스택 상부 및 하부 쪽으로 갈수록 스택중앙에 비해 온도가 낮은 분포를 보이기 때문으로 판단된다.

3.1.3 연속운전 성능

연료이용율에 따른 스택 성능평가 후 스택에 전류를 162A 인가한 상태에서 연료극가스는 내부개질을 50% 및 연료이용율 60%조건으로 수소, 메탄, 이산화탄소 및 물을 공급하고 공기극가스는 공기이용율 15%조건으로 공기를 공급한 상태에서 연속운전을 실시하였다. 연속운전 평가는 Fig. 6 및 Fig. 7과 같이 93시간부터 355시간까지 262시간동안 평가하였다.

스택전압은 연속운전 시작시점인 93시간에 4.034V이었

고 연속운전 종료시점인 355시간에는 4.014V로 1.89%/kh의 성능변화율을 보였다. 연속운전을 실시한 262시간동안 셀 전압은 Table 4와 같이 상부 1번 셀 5mV, 2번 셀 2mV

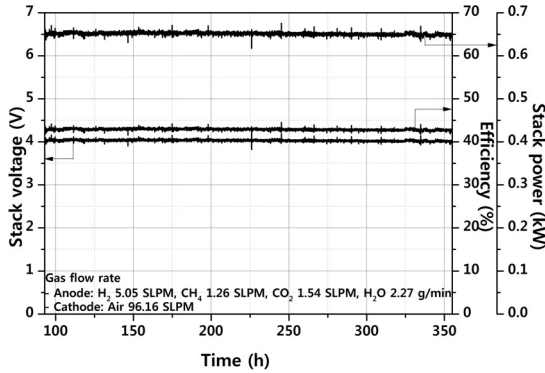


Fig. 6. Stack performance during continuous operation

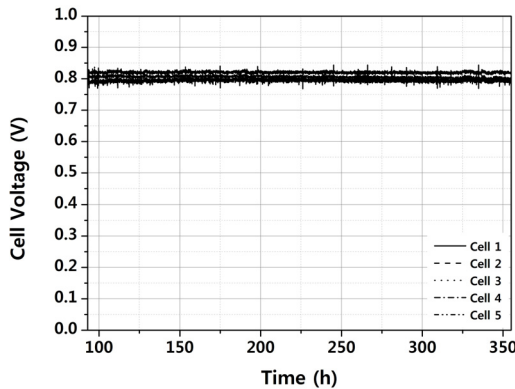


Fig. 7. Cell voltage during continuous operation

Table 4. Results of continuous operation – cell voltages

구분	Cell 1 (V)	Cell 2 (V)	Cell 3 (V)	Cell 4 (V)	Cell 5 (V)
93h	0.790	0.818	0.819	0.817	0.806
355h	0.795	0.820	0.819	0.821	0.801

Table 5. Stack performance under various internal reforming conditions

연료이용율 (%)	내부개질율 50%			내부개질율 60%			내부개질율 70%			내부개질율 80%			내부개질율 90%		
	전압 (V)	출력 (W)	효율 (%)	전압 (V)	출력 (W)	효율 (%)	전압 (V)	출력 (W)	효율 (%)	전압 (V)	출력 (W)	효율 (%)	전압 (V)	출력 (W)	효율 (%)
60	4.018	649.2	42.76	3.982	643.2	43.17	3.965	640.5	43.63	3.929	635.2	44.21	3.907	631.5	45.07
65	4.003	646.9	46.07	3.975	641.9	46.62	3.945	637.3	47.17	3.923	634.3	48.01	3.904	630.9	48.79
70	3.997	645.9	49.71	3.963	640.0	50.13	3.944	637.1	50.99	3.915	633.0	51.60	3.901	630.3	52.29
75	3.988	644.3	53.17	3.944	637.0	53.57	3.926	634.2	54.61	3.900	630.7	54.97	3.885	627.8	55.91
80	3.960	639.8	56.29	3.926	634.0	56.79	3.914	632.4	57.75	3.889	628.8	58.89	3.875	626.0	59.75

및 4번 셀 3mV 증가하였고 3번 셀은 전압변화가 없었으며, 5번 셀은 5mV 감소하였다.

3.2 내부개질율 변화에 따른 스택 성능

연속운전 성능평가 종료 후 Fig. 8과 같이 내부개질율 변화에 따른 스택의 성능을 355시간부터 381시간까지 스택에 전류를 162A 인가한 상태에서 공기이용율은 15%로 고정하고 연료극가스의 조성 및 유량을 변화시키면서 실시하였다. 연료극가스는 내부개질율 50%, 60%, 70%, 80% 및 90%의 조건에서 각각의 내부개질율마다 연료이용율을 60%에서 80%까지 5%씩 높여가면서 실시하였다. 각 조건에서 측정된 스택의 전압, 출력 및 효율을 Table 5에 정리하였다.

각 내부개질율에 대해 연료이용율에 따른 스택전압의 변화를 Fig. 9에 나타내었다. 각 내부개질율에 대해 연료이용율 60%~80%범위에서 스택의 전압변화율을 계산해보면 내부개질율 50%에서는 $-2.60\text{mV}/U_f$, 60%는 $-2.84\text{mV}/U_f$, 70%는 $-2.42\text{mV}/U_f$, 80%는 $-2.06\text{mV}/U_f$, 90%는 -1.67

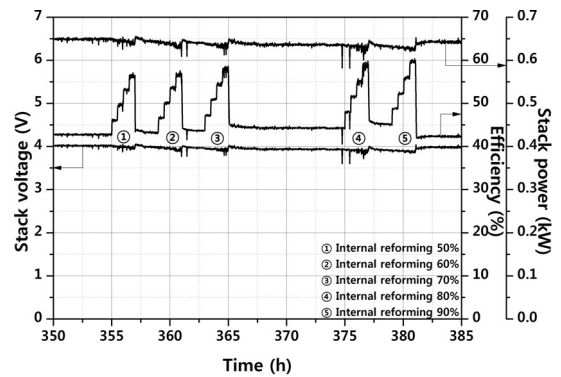


Fig. 8. Stack performance change during various internal reforming conditions

mV/U_F로 내부개질율이 높아질수록 연료이용율 증가에 따른 스택의 전압변화율이 감소하는 경향을 보였다.

각 내부개질율에 대해 연료이용율에 따른 스택 출력 및 효율의 변화는 Fig. 10에 나타내었다. 연료이용율 60%를 기준으로 내부개질율 50% 및 90%에서의 스택출력은 649.2W와 631.5W로 17.7W차이를 보였고, 연료이용율 80%를 기준으로 내부개질율 50% 및 90%에서의 스택출력은 639.8W와 626.0W로 13.8W차이를 보여 연료이용율이 높을수록 내부개질율 변화에 따른 성능차이는 작아지는 경향을 보였다. 내부개질율 50~90% 범위에서 연료이용율 65%이상일 때 45%이상의 스택효율을 보였으며, 스택효율을 50%이상으로 유지하기 위해서는 연료이용율을 최소 70%이상으로 설정해야함을 알 수 있었다.

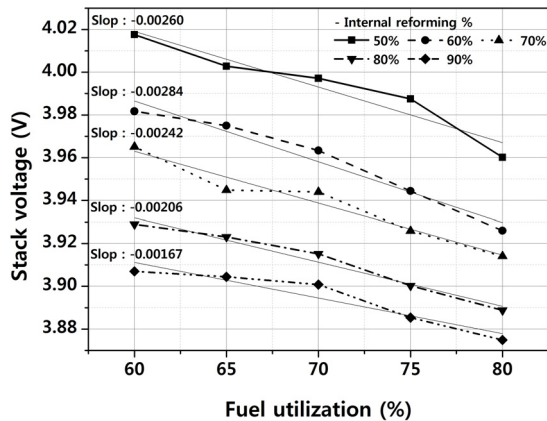


Fig. 9. Stack voltage and fuel utilization at various internal reforming conditions

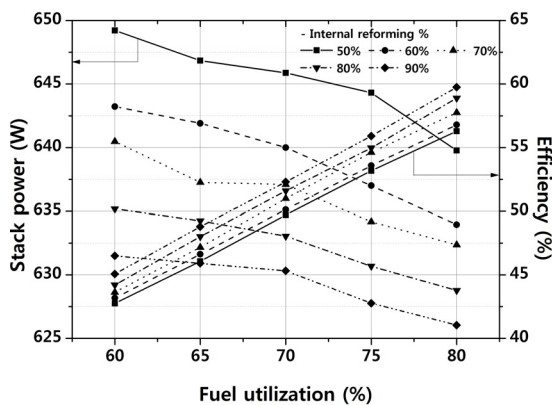


Fig. 10. Stack power and fuel utilization at various internal reforming conditions

4. 결론

본 연구에서는 수소, 메탄, 이산화탄소 및 물을 연료극 가스로 사용하여 내부개질조건에서 400cm²급 연료극지지체 평판형 셀을 적용한 5셀 스택의 초기성능, 연속운전 성능 및 내부개질율 변화에 따른 성능 평가를 전기로 온도 700°C 분위기에서 실시하였다.

스택의 전류-전압(I-V) 특성은 스택에 전류를 162A인 가시 스택 전압 3.989V 및 스택 출력 644.5W의 성능을 보였다. 연료이용율 변화에 따른 스택 특성은 스택의 인가전류 162A로 고정된 상태에서 연료이용율을 50%에서 80%까지 증가시키면 연료이용율 1%당 스택 효율이 0.689% 증가하는 것으로 평가되었다.

연속운전 성능은 스택에 전류를 162A인가한 상태에서 내부개질율 50%, 연료이용율 60% 및 공기이용율 15%조건으로 262시간동안 평가시 스택전압은 1.89%/kh의 변화율을 보였다.

내부개질율 변화에 따른 스택성능은 내부개질율을 높일수록 스택의 성능은 낮아지는 경향을 보였으며 연료이용율이 높을수록 내부개질율에 따른 스택성능차이는 감소하는 경향을 보였다. 내부개질율 50~90% 범위에서 스택효율을 50%이상 얻기 위해서는 연료이용율을 70%이상의 조건으로 운전해야함을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제입니다(No. 20153010130460).

References

- [1] Hirschenhofer J.H., Stauer D.B., Engleman R.R., Klett M.G., 1998, "Fuel cell handbook", 4th ed., Parsons Corporation Reading P.A for U.S. Department of Energy.
- [2] O'Hayre R., Cha J.W., Colella W., Prinz F.B., 2008, "Fuel cell fundamentals", 2nd ed., John Wiley & Sons,

New York.

- [3] Laosiripojana N., Assabumrungrat S., 2007, "Catalytic steam reforming of methane, methanol and ethanol over Ni/YSZ: the possible use of these fuels in internal reforming SOFC", *J. Power Sources*, **163**, 943-951.
- [4] Saunders G.J., Kendall K., 2002, "Reactions of hydrocarbons in small tubular SOFCs", *J. Power Sources*, **106**, 258-263.
- [5] Lanzini A., Leone P., 2010, "Experimental investigation of direct internal reforming of biogas in solid oxide fuel cells", *Int. J. Hydrogen Energy*, **35**(6), 2463-2476.
- [6] Shiratori Y., Oshima T., Sasaki K., 2008, "Feasibility of direct-biogas SOFC", *Int. J. Hydrogen Energy*, **33**(21), 6316-6321.
- [7] Shiratori Y., Ijichi T., Oshima T., Sasaki K., 2010, "Internal reforming SOFC running on biogas", *Int. J. Hydrogen Energy*, **35**(15), 7905-7912.