

## 50 kW급 인산형 연료전지 발전 시스템의 전산모사 및 제어구조 설계

이지숙 · 김요셉\* · 이광순† · 이희종\*\* · 양재춘\*\* · 서성현\*\*

서강대학교 화학공학과

121-742 서울시 마포구 신수동 1

\*LG 석유화학(주)

550-805 여수시 중흥동 754

\*\*LG-Caltex 정유(주) Value Creation Center

305-380 대전시 유성구 문지동 104-4

(2002년 12월 2일 접수, 2003년 1월 16일 채택)

## Flow Sheet Simulation and Control Structure Design for a 50 kW Phosphoric Acid Fuel Cell System

Ji S. Lee, J. Kim\*, Kwang S. Lee†, Hee J. Lee\*\*, Jae C. Yang\*\* and Seong H. Seo\*\*

Department of Chemical Engineering, Sogang University, 1, Shinsoo-dong, Mapo-gu, Seoul 121-742, Korea

\*LG Petrochemical Corp., 754, Chungheung-dong, Yosu 555-805, Korea

\*\*Value Creation Center, LG-Caltex Oil Corp., 104-4, Munji-dong, Yusung-gu, Daejeon 305-380, Korea

(Received 2 December 2002; accepted 16 January 2003)

### 요 약

연료전지는 대체발전 시스템으로 매우 높은 관심의 대상이 되고 있음에도 불구하고, 이제까지 대부분의 연구는 전극물질의 개발과 스택의 설계에 국한 되어왔다. 간혹 개질기와 스택을 포함한 전 공정의 최적설계에 대한 연구결과가 보고되었으나, 제어계 설계에 관한 연구결과는 거의 발표된 바가 없다. 본 연구에서는 상업용 공정모사기인 HYSYS를 이용한 정상상태 수치모사를 바탕으로 50kW급 인산형 연료전지 시스템의 제어계 설계를 수행하였다. 연료전지 제어계 설계에서 먼저 문제가 되는 것은 최외곽 제어루프에서 어느 공정변수를 제어할 것인가 하는 것이다. 본 연구에서는 다양한 모사실험을 통하여 수소 이용률을 피제어변수로 선택할 것을 제안하였다. 이때 수소 이용률은 측정이 불가능하므로 이를 측정하는 예측모델을 함께 제안하였다. 이 제어루프를 근거로, 대상으로 한 인산형 연료전지 시스템의 제어구조를 제안하였다.

**Abstract** - Despite the keen and continuous interest in the fuel cell system as an alternative electricity generation system, the research has been confined mostly to the electrode material development and stack design. Sometimes, optimal design of the integrated system has also been reported. On the other hand, research on control system design has been scarcely presented even though a fuel cell system may be subject to frequent load change during operation. In this study, a control system structure for a 50kW PAFC (Phosphoric Acid Fuel Cell) system has been presented based on steady state simulation studies using the commercial flow-sheet simulator, HYSYS. The prime difficulty encountered in the fuel cell control system design against load change is that it is not clear which process variable should be regulated in the primary control loop. In this study, through extensive simulation study, the hydrogen utilization ratio has been chosen as a regulation variable for the primary control loop. Since the hydrogen utilization ratio cannot be measured directly, an inference model is devised and proposed, too. On the basis of the concept of the primary control loop, the control structure for the whole PAFC system has been suggested.

Key words: Phosphoric Acid Fuel Cell (PAFC), Control System Design, Load Change

### 1. 서 론

연료전지란 연료(주로 수소) 및 산소가 가지고 있는 화학에너지를 전기화학반응에 의해 곧바로 전기에너지로 변화시키는 고효율의 침단 청

<sup>†</sup>To whom correspondence should be addressed.

E-mail: kslee@ccs.sogang.ac.kr

정 발전 장치이다[1]. 이에 따라 화석연료를 연소시키는 기존의 에너지 회수방법을 대체하는 방법으로 큰 주목을 받는 가운데 우리나라를 비롯한 세계 각국에서 알칼리형 연료전지(AFC), 인산형 연료전지(PAFC), 용융 탄산염 연료전지(MCFC), 고체 산화물형 연료전지(SOFC), 고분자 전해질형 연료전지(PEMFC) 등 각종 연료전지의 개발이 진행 되고 있다. 인산형 연료전지는 이 중 가장 많은 연구가 수행된 분야이며, 거의

상업화 단계에 돌입 되어있다. 일본이나 미국, 유럽 등지에서는 대규모 전력 공급용 11 MW급, 그리고 소규모 분산형인 200 kW급의 실증실험을 각각 마쳤으며, IFC와 ONSI사에서는 200 kW급 PC25TM을 상업화 한 상태이다[2, 3]. 한편 국내에서는 인산형 연료전지의 경우 1993년부터 연구가 시작되어 50 kW급 스택 요소 기술개발 및 주변장치(인버터, 개질기)의 개발이 이루어진 상태이며 또한 이의 실용화를 위한 연구가 진행 중인 상황이다[4].

연료전지의 단위 공정은 크게 개질기, 변성 반응기, 스택, 냉각 시스템으로 나눌 수 있다. 상업화된 연료 전지 발전 시스템의 개발을 위해서는 이들 각 단위 공정의 개발 뿐 아니라 각각의 단위 공정을 연계하여 이를 운전 및 제어할 수 있는 제어시스템의 개발이 필수적이다. 특히 부하변동에 적절히 대처할 수 있는 제어시스템의 개발은 연료전지의 운전효율 뿐 아니라 수명을 극대화하는 필수요소 기술이라 할 수 있다. 현재 연료전지에 관한 연구 중 가장 활발한 분야는 전극이나 스택의 개발에 관한 것으로 이미 상당히 연구결과가 누적되어 있으며, 개질기와 스택을 연계하는 전공정 측적 합성에 관한 연구도 간혹 발표되고 있다. 그러나 운전기술과 관련된 부하변동에 대응하기 위한 제어방법에 대한 연구는 아직 매우 미비한 상태이다[5].

본 연구에서는 LG-Caltex 정유(주)에서 개발한 50 kW급 인산형 연료전지 발전시스템을 대상으로 하여 메탄/스팀을 원료로 하는 개질 장치, 스택 그리고 스택 냉각 장치를 연계하는 전공정 모사기를 상업용 공정 모사기인 HYSYS를 이용하여 구성하고, 이를 이용하여 부하별 정상 상태 전산모사를 수행하였으며, 그 결과를 바탕으로 공정의 운전 특성을 분석하였다. 그리고 그 결과를 바탕으로 부하변동에 대응하기 위한 제어 방법의 개념을 제시하고자 하였다.

HYSYS에서 제공하는 공정 모듈들이 개질기나 스택 등 연료전지 시스템의 공정들을 모사하기에는 적합하지 않은 부분들이 있어 별도의 공정 모듈들을 개발하였으며, 이렇게 개발된 모사기가 실제 공정의 운전 결과를 잘 표현함을 확인하였다.

## 2. 본 론

### 2-1. 전산 모사 대상 시스템

대상 연료전지 시스템은 LG-Caltex 정유(주)에서 제작하여 운전 중인 50 kW급 인산형 연료전지로 공정 흐름도는 Fig. 1과 같다. 탈황장치(HDS)를 거친 천연가스(메탄)는 스팀과 함께 ejector를 통과한 후 저온 변성 반응기(LTSC)와 열교환을 거쳐 개질기(reformer)로 공급된다. 개질 반응에 필요한 열은 촉매연소기(catalytic combustor)에서 생성된 고온 가스와의 열교환에 의해 공급된다. 개질 반응이 끝난 기체는 고온 변성반응기(HTSC)에서 일차적으로 CO가 제거되며, 이 때 스택의 미반응 기체(aneode-off gas)와 열교환을 하게 된다. 그 후 LTSC를 통하여 CO의 농도가 1%미만으로 낮아진다. CO가 제거된 기체는 스택의 음극으로 공급되어 양극의 산소와 반응하여 전기와 수증기를 생산하게 된다. 수증기는 양극의 공기와 섞여 나오고, 스택의 미반응 기체는 촉매연소기의 연료로 되돌려진다. 스택의 냉각수는 스팀으로 변화하여 일부는 배출되고, 개질반응의 원료로 사용된다.

개질기는 LG-Caltex 정유(주)에서 평판형으로 설계, 제작한 것으로 기존의 원통형 개질기에 비해 설치 면적이 작고, 평판의 면적 및 적층수에 따라 수소 생산량을 조절할 수 있다는 장점을 가지고 있다. CO를 제거하기 위해 사용되는 저온 및 고온 변성 반응기도 모두 평판형으로 제작되어 개질기와 함께 적층함으로써 전체 소요공간을 극소화하고 개질기와의 열교환이 용이하도록 하였다[6, 7]. 스택의 음극은 10 wt%의 Pt/C 촉매를, 양극은 20 wt%의 alloy 촉매를 사용하고 있다. 단위전지의 유효면적은 3,600 cm<sup>2</sup>이며 단위전지 100단이 적층되어 스택을 구성하고 있다.

### 2-2. 각 단위 공정 및 모사기 구성

#### 2-2-1. 개질기

니켈 촉매를 이용한 개질기는 메탄을 개질시켜 고농도 수소를 생산하는 단위 공정이다. 개질기에서 일어나는 반응은 다음과 같다.

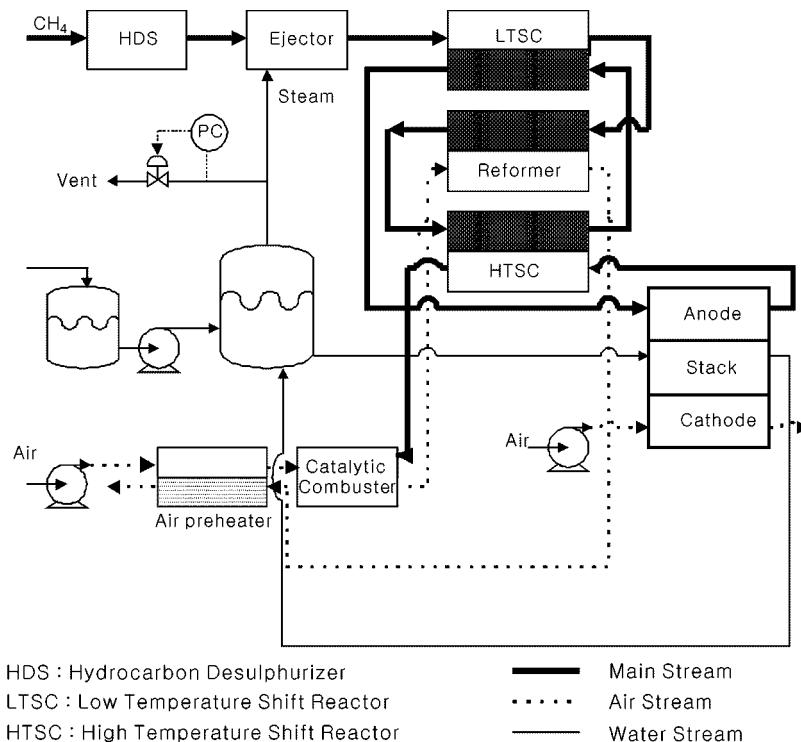


Fig. 1. Process flow diagram of the 50 kW PAFC in LG-Caltex Oil Corp.

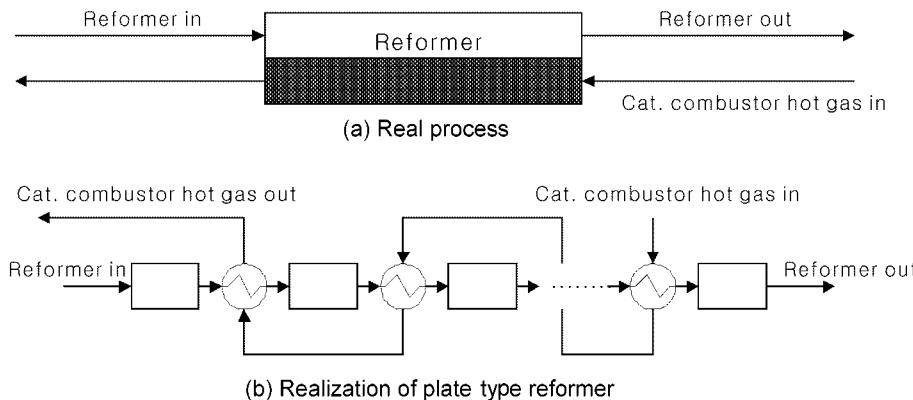


Fig. 2. Realization of the reformer for simulation.



개질반응은 전체적으로 강한 흡열 반응으로 고온 및 저압 조건에 의하여 정반응 진행이 유리하다. 일반적으로 개질기는 650-900 °C의 고온에서 운전되며 본 연구의 대상 시스템은 700 °C 부근에서 운전한다. 평판형 개질기는 개질 반응이 일어나는 저온부와 측매 연소기를 통과한 고온의 가스가 통과하는 고온부로 구성되어 있으며 이 두 부분을 나누는 가운데 평판을 통하여 반응에 필요한 열이 저온부로 전달된다. 이 때 저온부와 고온부의 물질 흐름은 향류가 된다. 평판형 개질기를 HYSYS로 구현하기 위해서 반경방향 분포를 무시한 1차원 충전층 반응기로 근사하여 모델을 수립하였다. 좀 더 구체적으로는 반응기 전체를 10개의 단열 연속흐름 교반응기(CFSTR)로 나누고 Fig. 2와 같이 각 반응기의 생성물이 측매연소기의 고온 가스와 열교환을 거친 후 다음 반응기로 들어가도록 구성하였다. 실제 공정은 개질기의 저온부와 고온부 흐름의 입구 온도가 주어지는 two point 경계치 문제로 주어진다. 이를 풀기 위하여 HYSYS에서는 고온부의 출구 온도를 가정하여 우측방향으로 진행 하며 해를 구한 후 개질기 저온부의 출구 온도가 720 °C에 일치하는지를 확인하고, 이 값이 일치할 때까지 고온부의 출구 온도를 재가정하는 shooting method를 이용하였다. 개질 반응식은 Kaihu Hou 등[8]에 의해 보고된 Ni-a-Al<sub>2</sub>O 측매 상에서의 반응 속도 식과 평형 상수를 사용하였다.

개질 측매 상에서 일어나는 반응식은 HYSYS가 수용할 수 있는 복잡성을 넘는 것으로 Visual Basic 프로그램으로 reaction extension을 구성하여 전산모사를 수행하였다. HYSYS를 이용해 계산된 개질기와 가열용 고온 가스의 온도 분포와 반응기내 반응 및 생성 가스들의 농도 분

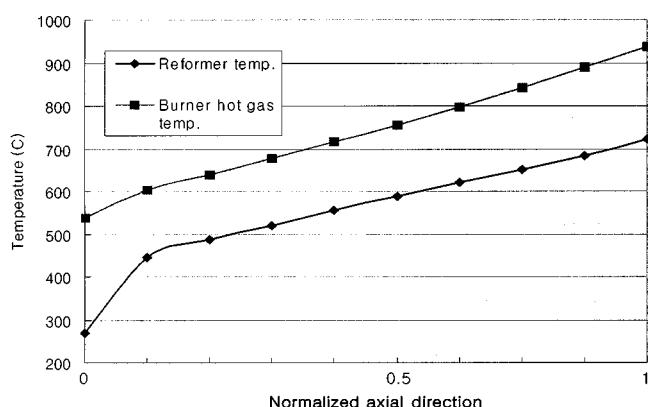


Fig. 3. Typical temperature profiles in the reformer.

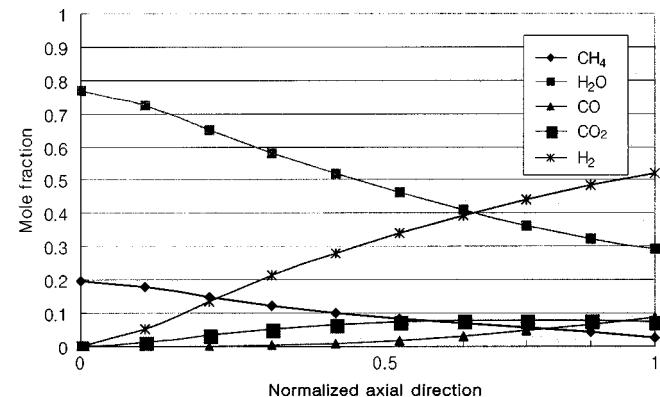


Fig. 4. Concentration profiles of each component in the reformer.

포는 Fig. 3, 4와 같다.

#### 2-2-2. 측매 연소기

측매 연소기는 anode-off gas나 메탄을 연소시켜서 개질 반응에 필요한 열을 공급하는 일을 담당한다. 측매 연소기에서 일어나는 주된 반응은 다음과 같다.



측매 연소기는 anode-off gas를 연소시켜 개질기에서 필요 한 열을 공급하고자 하였기 때문에 대부분의 경우 식 (2)의 반응이 지배하며, 식 (3)은 추가적으로 메탄을 연소시켜야 하는 경우에만 일어난다. 측매 연소기는 HYSYS 내의 단열 전환반응기로 구현하였으며 전환율은 100%로 가정하여 전산모사를 수행하였다. 단, 이것은 연료를 완전 연소시킬 수 있는 충분한 양의 산소가 공급될 때만 유효하다.

#### 2-2-3. 변성 반응기

개질 반응이 끝난 기체에는 약 7-12%정도의 CO가 포함되어 있어서, 이를 그대로 스택으로 공급하게 되면 스택의 전극 측매가 괴독되므로 CO의 농도를 1%이하로 낮추는 것이 필요하다. 변성 반응기에서는 CO가 수증기와 반응하여 CO<sub>2</sub>가 생성되는 아래와 같은 반응이 일어난다.



이 반응은 발열반응으로 온도가 낮을수록 평형상수가 증가하게 되므로 높은 전환율을 위해서는 저온 반응이 유리하며 압력에는 영향을 받지 않는다. 그리고 양론비 이상의 수증기를 공급할 경우 전환율이 상승하게 된다. 인산형 연료전지 시스템에서는 반응속도를 높이기 위해 면지

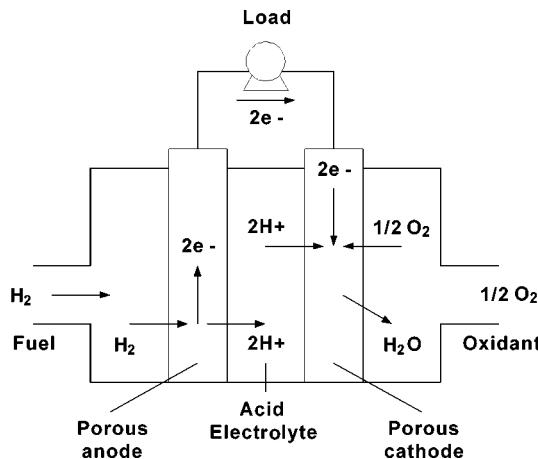


Fig. 5. Basic concept of the fuel cell.

HTSC(260~370 °C)를 사용하고, 높은 전환율을 얻기 위해 LTSC(200~260 °C)를 사용하는 2단 형태가 보편적이다. 변성 반응기는 단열 평형 반응기를 가정하고, HYSYS로 구현하였다. 실제 대상 시스템의 변성 반응 전환율(90%)과 HYSYS 내의 평형 반응기를 이용한 전산모사의 수행 결과(전환율 88%)가 비슷한 것으로 보아서 이 가정에 별 무리가 없는 것으로 판단된다.

#### 2-2-4. 스택

##### 2-2-4-1. Cell

###### 2-2-4-1-1. 기전력

연료전지는 Fig. 5에서와 같이 연료전극(anode), 산화전극(cathode) 그리고 전해질로 구성된다. 연료전극에서 수소가 수소 이온과 전자로 나뉘는 전기화학반응이 일어난다. 수소 이온은 전해질을 통과하여 산화전극으로 이동하고, 전자는 외부회로를 통하여 산화전극으로 흘러간다. 산화전극에서는 산소와 수소이온 그리고 전자가 반응하여 물이 생성된다. Cell에서 일어나는 반응을 통해서 전기 에너지와 열에너지를 얻을 수 있다.

연료전지 cell의 기전력은 아래의 Nernst 식으로 표현된다[9].

$$E = E^0 + \frac{RT}{2F} \ln \left( \frac{P_{H_2} P_{O_2}^{0.5}}{P_{H_2}^{0.5} P_{H_2O}} \right), E^0 = \frac{\Delta G_f^0}{2F} \quad (5)$$

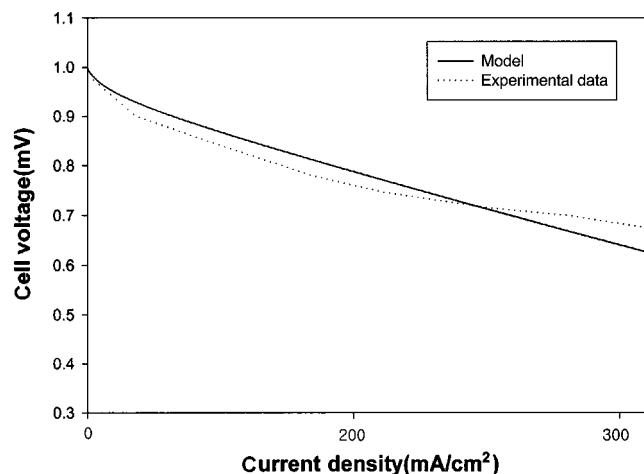


Fig. 6. Comparison of the cell voltage true the model with experimental data.

위 식 (5)로 주어진 cell의 기전력은 가역적 상태에서 얻을 수 있는 이상 기전력이다. 이것은 이 기전력이 부하측으로 전류를 흘리지 않으며 측정될 때 나타나는 값을 의미하며, 전류가 흐르기 시작하면 여러 비가역 현상이 나타나 기전력이 낮아진다. 이런 비가역적 현상을 이해하는 것은 cell의 수지식 수립에 있어서 매우 중요하다[9].

전압강하 현상의 원인으로는 activation overpotential, fuel crossover, 분압강하에 의한 전압강하, Ohmic loss 등을 들 수 있다. 모든 비가역성을 고려하여 표현된 cell 운전 기전력의 식은 다음과 같이 근사적으로 표현할 수 있다[9].

$$V(i) = E - (i + i_n)r - A \ln \left( \frac{i + i_n}{i_0} \right) + B \ln \left( 1 - \frac{i + i_n}{i_l} \right) \quad (6)$$

위 식 (6)의 전형적인 상수 값은 참고문헌[9]에 제시되어 있으며, 이 값을 중심으로 대상 스택의 상수 값을 실험치에 regression하여 결정하였다. Fig. 6에 이렇게 구성된 cell 기전력 모델과 50 kW급 인산형 연료전지 시스템의 운전 데이터를 비교하였으며, 비교적 좋은 일치를 보이는 것을 확인할 수 있다.

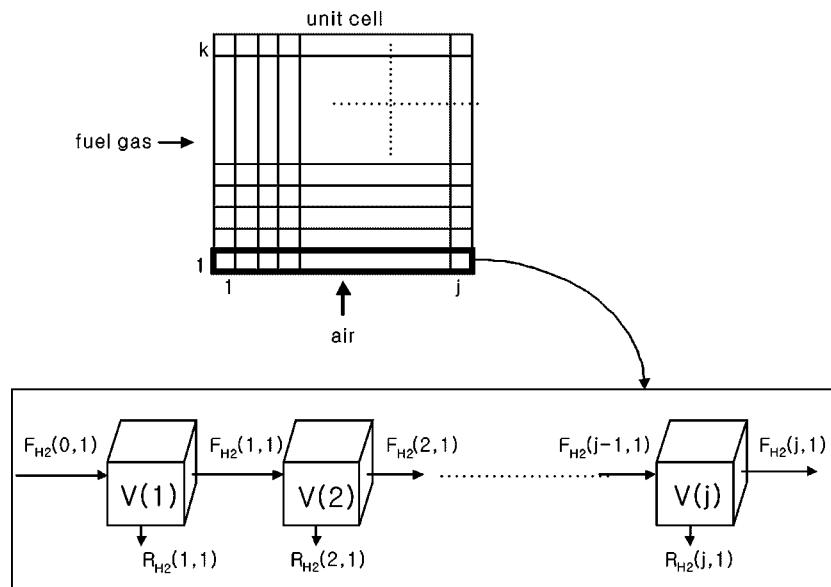


Fig. 7. Stack model as a distributed parameter system.

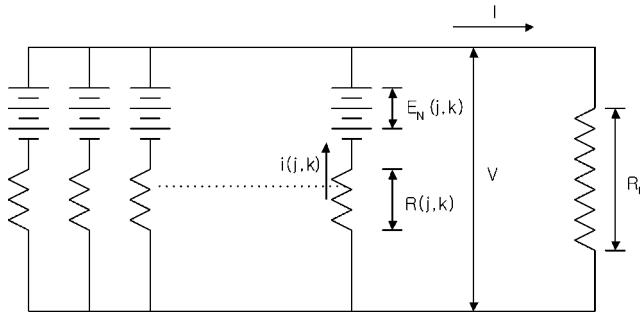


Fig. 8. Equivalent circuit representation for the Kirchhoff's law.

## 2-2-4-1-2. Cell 모델링

스택은 기본적으로 분산 파라미터계이다. 식 (5)에서도 알 수 있듯이 단위전지 각 지점에서는 수소와 산소의 농도 분포에 의하여 기전력 분포가 발생하게 되고, 이로 인하여 전류밀도의 분포도 생기게 된다. 이런 스택의 특성을 파악하기 위해 다음과 같은 가정을 도입하여 계산을 수행하였다[10].

- 하나의 단위전지는  $j \times k$ 개의 CFSTR로 구성되어 있다(Fig. 7).
- 단위전지의 각각의 cell들은 병렬로 연결된 전지와 같으므로 Kirchhoff의 법칙을 만족한다(Fig. 8).
- 단위전지 내에서의 온도 분포는 무시 한다.

위와 같이 스택을 분산 파라미터계로 가정한 조건에서 계산된 cell의 전형적인 전류밀도 분포모사가 Fig. 9와 같다. 그럼에도 불구하고 수소와 산소, 수증기의 농도가 균일하며, 각 지점의 전류밀도도 일정하다고 가정하였다. 수지식은 부하의 저항( $R$ ), 음극과 양극, 냉각수의 입구 조건, 냉각수 출구 압력은 주어졌다고 가정하고 수립하였다. 스택의 수소 이용률은 최대 85% 이상을 벗어날 수 없다고 가정하였다.

## 2-2-4-2. 스택 모델링

Cell의 비가역성을 고려한 스택 모델을 HYSYS 내의 모듈로는 구현할 수 없어 Visual Basic을 이용한 operation extension을 구성하여 HYSYS와 연동하여 계산하였다. Fig. 10은 스택 모듈을 간단히 표현한 것이다.

앞 절에서 언급한 바와 같이 스택을 뭉친 파라미터계로 가정하는 것 이 무리가 없으므로, HYSYS에서도 스택을 뭉친 파라미터계로 가정하

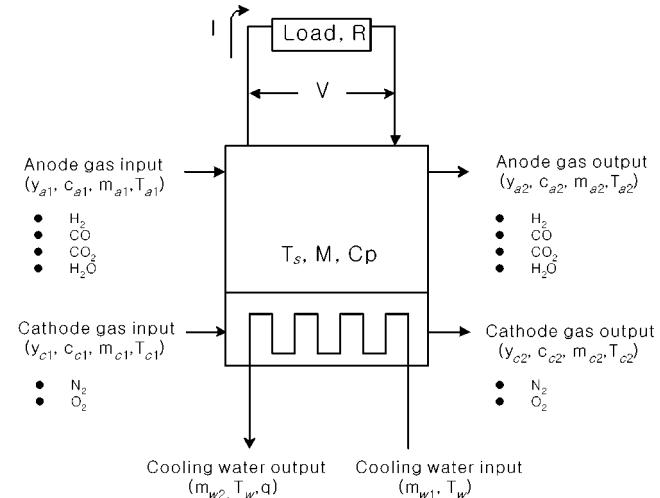


Fig. 10. Stack model for the heat and material balances.

고 열 및 물질의 정상상태 수지식을 수립하였다. 즉, 단위전지 내에서 수소와 산소, 수증기의 농도가 균일하며, 각 지점의 전류밀도도 일정하다고 가정하였다. 수지식은 부하의 저항( $R$ ), 음극과 양극, 냉각수의 입구 조건, 냉각수 출구 압력은 주어졌다고 가정하고 수립하였다. 스택의 수소 이용률은 최대 85% 이상을 벗어날 수 없다고 가정하였다.

## 물질 수지식

$$\text{H}_2: m_{a1}y_{a1}^{H_2} - m_{a2}y_{a2}^{H_2} - \frac{n\text{Si}}{2F} = 0, \quad \eta = 1 - \frac{m_{a2}y_{a2}^{H_2}}{m_{a1}y_{a1}^{H_2}} \leq 0.85 \quad (7)$$

$$\text{O}_2: m_{c1}y_{c1}^{O_2} - m_{c2}y_{c2}^{O_2} - \frac{n\text{Si}}{4F} = 0 \quad (8)$$

## 열 수지식

$$(c_{a1}m_{a1}T_{a1} + c_{c1}m_{c1}T_{c1}) - (c_{a2}m_{a2} + c_{c2}m_{c2})T_s \quad (9)$$

$$-UA(T_s - T_w) - \frac{n\text{Si}}{2F}\Delta H_f^{H_2O} - R(\text{Si})^2 = 0$$

$$UA(T_s - T_w) - qm_v\lambda = 0 \quad (10)$$

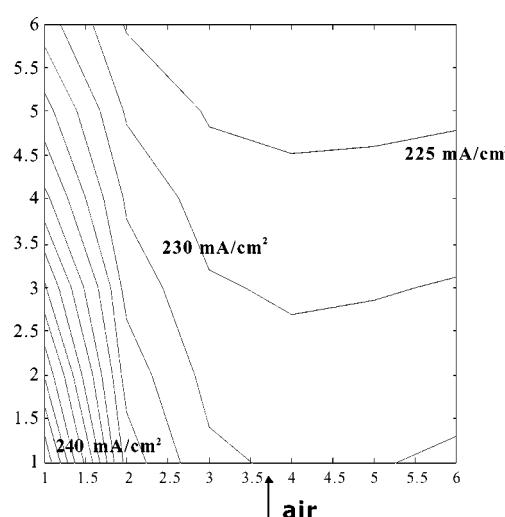
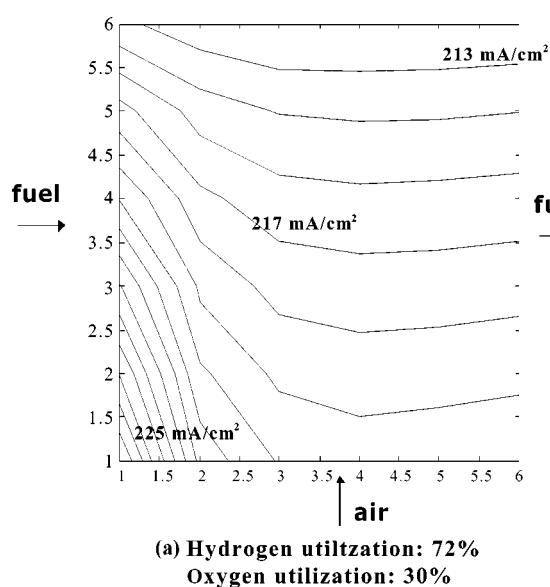


Fig. 9. Current density distributions in the stack.

식 (7)과 (8)의 세 번째 항은 각각 스택에서의 수소와 산소의 소모량을 의미한다. 2-2-5에서 더 상세히 설명되지만 스택의 온도를 가능 한 한 균일하게 유지하기 위하여 냉각수는 포화상태의 물로 공급되고 스택과의 열교환에 의해 그 중 일부가 수증기로 변환되는 상변화를 수반하는 것으로 가정하였다. 위 수지식과 식 (6)을 연립해서 스택에 대한 계산을 수행하였다. Fig. 10에서 부하(R)과 양극과 음극 가스의 입력조건 및 냉각수 입력 조건이 주어지면 나머지 값들이 계산되도록 하였다. 냉각수의 온도  $T_w$ 는 Fig. 1의 스텀 템크의 압력을 조절함으로써 결정되며 170 °C로 유지시켰다.

#### 2-2-5. 냉각 시스템

스택 내에서 발생하는 전기 화학적 반응에 의한 반응열은 상당히 커서 이를 적절히 제거하지 않으면 내부 온도 상승으로 인해 전지의 내구성이 크게 손상된다. 따라서 이를 방지하기 위한 냉각 구조가 반드시 필요하다[11].

인산형 연료전지 스택의 적정 운전온도는 180°C 부근이며 가능한 cell 내에 온도분포를 최소화하는 것이 좋다. 온도가 지나치게 높아지면 전해질로 사용되는 인산의 증발량이 커져 문제가 생기며, 온도가 낮아지면 전기화학 반응속도가 낮아져 효율에 문제가 발생한다. 이러한 적정 온도를 효과적으로 유지시키기 위하여 냉각수는 포화상태의 물로 공급되고 스택과의 열교환에 의해 그 중 일부가 수증기로 변환되는 상변화를 수반하도록 구성하였다. Fig. 1에서 볼 수 있는 것과 같이 수증기를 포함한 냉각수는 스텀 텡크로 환류되어 물과 증기로 분리된다. 스텀 텡크는 vent양을 조작하여 압력을 조절하도록 하였으며 이 압력 설정치에 의하여 포화상태의 냉각수 온도가 결정된다. 냉각수의 온도는 170°C로 유지시켰다.

### 3. 전산모사 결과와 제어 시스템 설계

HYSYS으로 구현한 인산형 연료전지 발전 시스템 정상상태 모사 프로그램은 Fig. 11과 같다. 전산모사 조건은 다음과 같다. 우선 개질기에 공급하는 스팀/탄소의 물비는 2.76이며, 개질기 출구의 온도는 720 °C

일정하게 유지하였다. 일반적으로 스택 운전 시에 양극에 공기를 과량으로 공급하는 경우, 냉각수로 회수되는 열량이 작아져 스템 생산량이 줄어들 뿐 아니라 송풍기의 소비 전력도 커지게 된다. 그러므로 스택 운전에는 영향을 주지 않는 범위 내에서 에너지 손실을 최소화할 수 있는 적절한 산소 이용률을 결정하는 것이 필요하다. 스택을 분산 파라미터 계로 가정하여 전산모사를 수행한 결과[10] 산소 이용률이 30% 이상인 경우에는 그 이하일 때 보다 생산전력이 급격히 감소하는 것을 알 수 있었다. 따라서 적절한 산소 이용률은 30%로 정하고 정상상태 전산모사를 수행하였다.

### 3-1. 모사기 성능 검증

HYSYS로 구현한 연료전지 발전 시스템 모사기의 성능을 평가하기 위하여 LG-Caltex 정유(주)의 실제 시스템 운전 데이터와 그 결과를 비교하여 보았다. 운전 데이터는 각각 50% 부하와 70% 부하에서 얻은 결과이다. Table 1에서 볼 수 있듯이 모사기가 실제 시스템의 운전 결과를 잘 예측하고 있음을 알 수 있다. 이 외에 100% 부하에 대한 결과도 좋은 일치를 보였다.

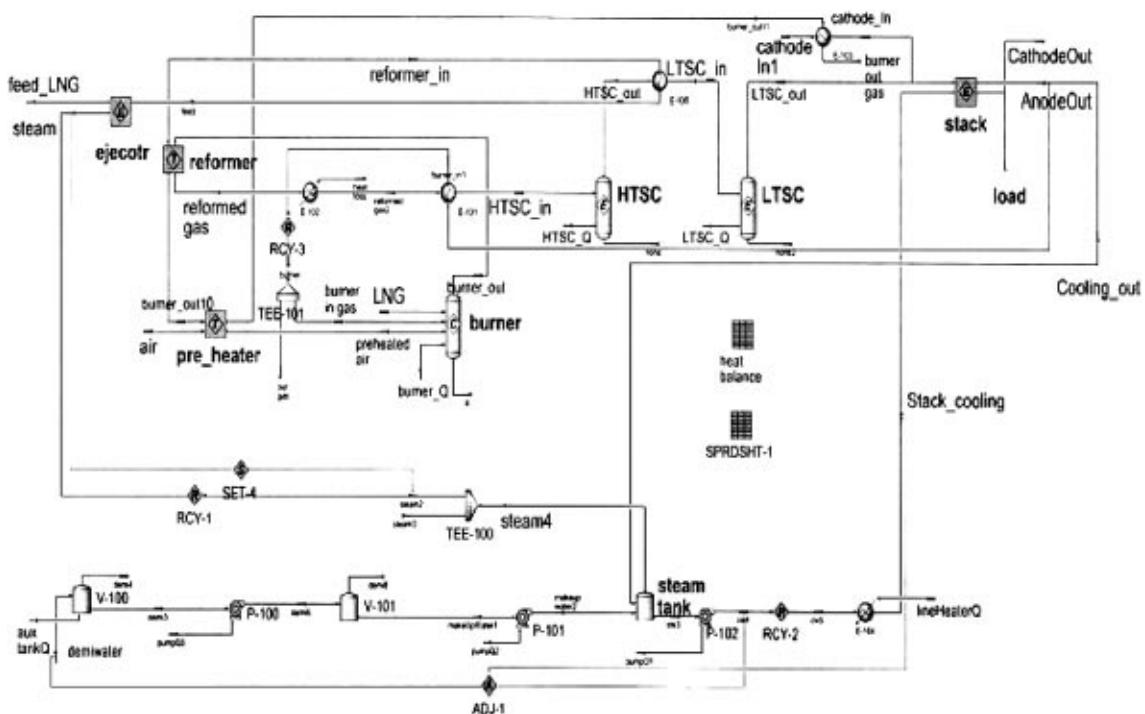
### 3-2. 부하 변동에 대응하기 위한 제어 구조

### 3-2-1. 피제어 변수의 선택

연료전지 시스템의 제어계 구성에서 가장 먼저 결정되어야 하는 것은 부하 변동이 있음에도 불구하고 일정한 값을 유지시켜야하는 피제어 변수를 무엇으로 선택하느냐 하는 것이다.

우선은 Cell 전압을 생각해 볼 수 있다. 연료전지 시스템은 부하 즉, 공정에서 요구하는 전류밀도를 공정의 외란으로 간주하면 전류밀도 변화에 따라서 전지의 전압도 변하는 특성이 있다(Fig. 6). 피제어 변수의 조건 중의 하나가 부하 변동이 있더라도 일정한 값으로 유지되어야 하는 것이므로 Cell 전압을 피제어 변수로 설정하는 것은 옳지 못하다.

다음으로 스택의 수소 이용률을 생각할 수 있다. 스택의 수소 이용율은 부하 변화가 발생하더라도 원료량을 늘이거나 줄여서 일정한 값으로 유지시킬 수 있으므로 최대치인 85% 이하 보다 낮은 값에서 조절하



**Fig. 11.** Process flow diagram of the 50 kW PAFC(HYSYS).

Table 1. Comparison of simulation results with experimental measurements

(a) 50 kW PAFC under 50% Load

Stream	Reformer in	Simulation results			Experimental results			
		Reformer out	HTSC out	LTSC out	Reformer out	HTSC out	LTSC out	
Flow rate (kmole/h)	H <sub>2</sub>	0	1.056	1.1456	1.231	1.0708	1.1511	1.12271
	CO	0	0.172	0.0823	0.0049	0.1597	0.0795	0.0034
	CO <sub>2</sub>	0	0.1494	0.239	0.3164	0.1623	0.2425	0.3185
	H <sub>2</sub> O	1.1111	0.6404	0.5508	0.4733	0.6269	0.5466	0.4706
	O <sub>2</sub>	0	0	0	0	0	0	0
	CH <sub>4</sub>	0.228	0.0039	0.0039	0.0039	0.0033	0.0033	0.0033
	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	0.025	0	0	0	0	0	0
	C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	0.0123	0	0	0	0	0	0
	C <sub>4</sub> H <sub>10</sub>	0.0026	0	0	0	0	0	0

(b) 50 kW PAFC under 70% Load

Stream	Reformer in	Simulation results			Experimental results			
		Reformer out	HTSC out	LTSC out	Reformer out	HTSC out	LTSC out	
Flow rate (kmole/h)	H <sub>2</sub>	0	1.4389	1.5781	1.672	1.5069	1.6059	1.6973
	CO	0	0.2493	0.1104	0.0159	0.1977	0.0986	0.0072
	CO <sub>2</sub>	0	0.1929	0.3321	0.4261	0.2485	0.3476	0.4390
	H <sub>2</sub> O	1.35	0.7149	0.5757	0.4816	0.6553	0.5562	0.4648
	O <sub>2</sub>	0	0	0	0	0	0	0
	CH <sub>4</sub>	0.3192	0.0134	0.0134	0.0134	0.0091	0.0091	0.0091
	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	0.035	0	0	0	0	0	0
	C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	0.0172	0	0	0	0	0	0
	C <sub>4</sub> H <sub>10</sub>	0.0037	0	0	0	0	0	0

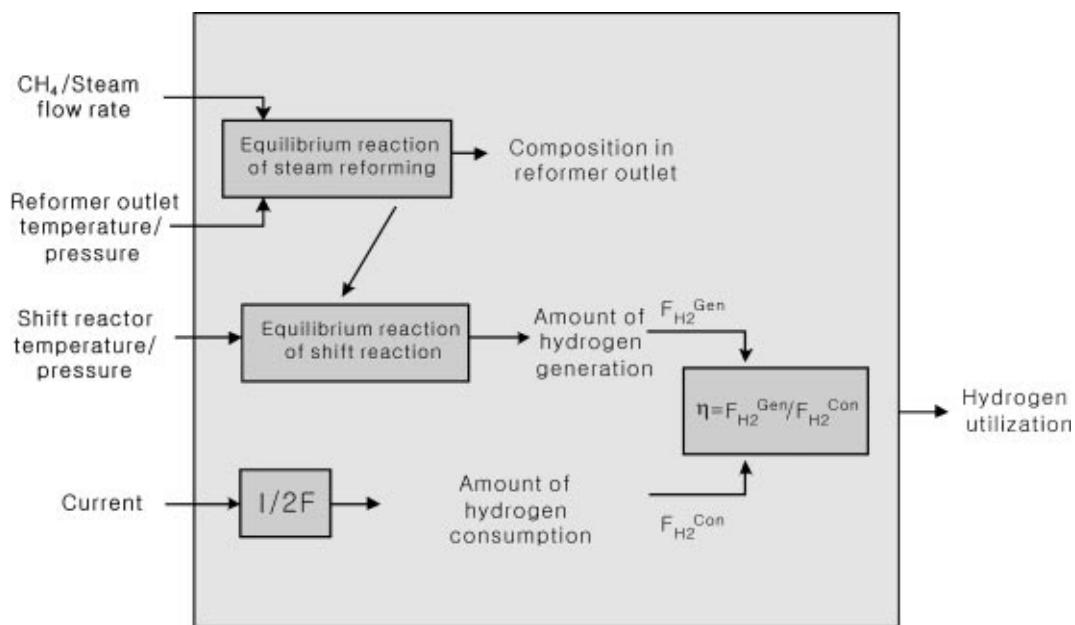


Fig. 12. Estimator of the hydrogen utilization ratio.

면서 부하 변동에 대응이 가능하다. 또한 수소 이용률을 직접 측정하기는 어려우나 추정하는 것은 가능하다. 앞의 모사결과로부터 수소생산량을 상당한 정밀도로 예측하는 것이 가능함을 확인할 수 있으며, 이때 부하로 흐르는 전류로부터 단위시간당 소모되는 수소량을 추정할 수 있으므로 수소 이용률을 계산할 수 있다. 사실 개질기 및 변성 반응기에서는 사실상 평형 반응이 이루어지므로 온도와 압력 그리고 원료의 공급량을 알고 있으면 모사기를 이용하지 않더라도 들어오는 수소의 양

을 추정할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 스택의 수소 이용률을 폐쇄 변수로 선택하였다. Fig. 12에 수소 이용률 추정기의 개념을 보였다.

위에서 설명한 수소 이용률 제어에 관한 간단한 예를 들어보면, 현재 수소 이용률이 70%라고 가정하면, 부하가 증가하면 현재 개질기에서 발생되는 수소량은 일정하므로 스택의 수소 이용률은 증가하게 된다. 그러나 수소 이용률을 70%로 유지하기 위해 원료(메탄)와 축매 연소기로 들어가는 공기의 유량을 변화시키도록 제어 동작이 실행되면 수소

**Table 2. Energy recovery from the 50kW PAFC system**

Hydrogen utilization ratio(%)		72	77	80
CH <sub>4</sub> Input	To reformer*(kcal/h, (%)	119078(100)	111705(100)	107237(100)
	To catalytic combustor*(kcal/h)	0	0	11187
Output	Electricity(kcal/h, (%)	50654(43)	50654(45)	50654(47)
	Steam(kcal/h, (%)	Latent heat 8424(7) Sensible heat 1699(1)**	8647(8) 9470(9) 1764(2)**	1932(2)**

\*Heat of combustion with reference state 25 °C, 1 atm gas

\*\*Reference state: water at 70 °C

발생량이 증가해서 수소 이용률은 70%로 일정하게 유지될 것이다.

### 3-2-2. 적절한 수소 이용률 선택

위에서 제시한 수소 이용률 제어 개념을 도입하기 위해서는 적절한 수소 이용률을 결정하는 것이 필요하다. 우선 안정성 측면에서 볼 때 최대치인 85% 이하의 값이면 아무런 문제가 없다. 그러나 경제적 측면을 고려할 때 가능한 한 anode-off gas만으로 개질기에 열을 공급하는 것이 효율적이다. 본 연구에서는 위의 두 가지 측면을 고려하여 적절한 수소 이용률 값을 선택하였다. 수소 이용률을 너무 낮게 선택하는 것은 사용되지 않을 수소를 불필요하게 많이 생산하는 것이 되므로 비효율적이다. 수소 이용률을 높이면 공정효율 측면에서는 유리하나 부하 증가 시에 대응하기 위한 여유가 부족할 뿐 아니라 수소결핍으로 스택에 무리가 가해질 가능성이 있다. 또한 스택의 anode-off gas만을 연소시켜서 개질기에 필요한 열을 공급할 수 없으므로 총매 연소기애 추가적으로 메탄을 공급해주어야 한다. 따라서 가능한 한 스택의 anode-off gas만으로 개질기에 필요한 열을 공급할 수 있으며, 적절한 수소 이용률 여유를 갖는 값을 선택하는 것이 필요하다.

적절한 수소 이용률을 선택하기 위하여 생산전력은 50 kW 부근으로 유지시키고, 스택의 수소 이용률을 변화시켜 가면서 정상상태 전산모사를 수행해본 결과 Table 2와 같은 결과를 얻었다. 수소 이용률 72%와 77% 인 두 경우에는 anode-off gas만을 연소시킴으로 개질기에서 필요한 열을 충족시킬 수 있었다. 그러나 수소 이용률을 80%로 설정한 경우는 추가적인 메탄가스의 공급이 필요하였다. 생산 전력이 33 kW, 40 kW인 경우 anode-off gas 만을 연소시켜 개질반응에 필요한 열을 공급할 수 있는 스택의 최대 수소 이용률은 각각 70%, 72%이었다.

참고로 Table 2에 수소 이용율에 따른 에너지 회수량 및 비율을 함께 보였다. 50 kW운전시 공급되는 총 에너지(메탄의 연소열) 중 얻어지는 전기로 회수되는 비율은 43-47%이었고, 스팀으로 회수되는 비율은 8-11% 이었으며, 수소 이용률이 높을수록 에너지 회수율이 높아지는 것을 확인할 수 있었다.

### 3-3. 개질기 온도 제어

부하 변동이 발생하더라도 수소 이용률을 일정하게 유지하기 위해서는 일차적으로 원료의 공급량이 변해야 함을 3-2-1에서 제시하였다. 이 제어기법이 제대로 적용되기 위해서는 부가적으로 개질기 온도도 일정하게 유지해야 한다. 스택의 anode-off gas의 양이 변하게 되면 총매 연소기에서 발생하는 열량이 변하므로 개질기의 온도도 변하게 된다. 개질기의 온도변화는 수소 생산량의 변화를 수반하게 된다. 따라서 부하변동이 발생하더라도 개질기의 온도를 일정하게 유지하기 위해서는 총매 연소기에 공급하는 공기의 유량을 변화하던지 아니면 추가적인 메탄의 공급이 필요하게 된다. 개질기 온도는 두 개의 조작변수(공기유량, 메탄유량)를 사용하여 적절한 split range 제어(예를 들어 입력신호가 50% 이하일 때는 메탄 공급 증가, 50% 이상일 때는 공기 유량 증가)를 통해 일정하게 유지될 수 있다.

개질기 온도를 제어하기 위한 조작변수로 총매 연소기에 공급하는 공기유량을 선택하는 경우, 제어입력(공기 유량)과 공정출력(개질기 온도)의

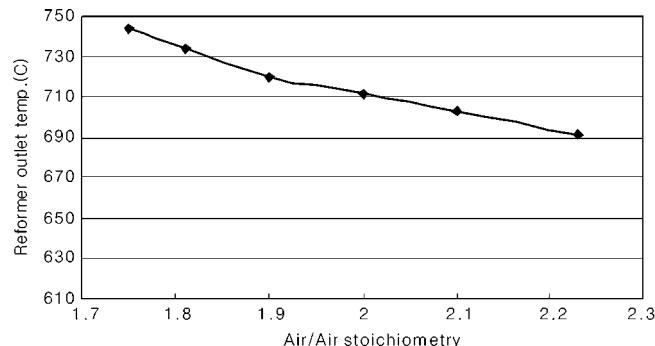


Fig. 13. Reformer outlet temperature profiles as the air flow rate of catalytic combustor.

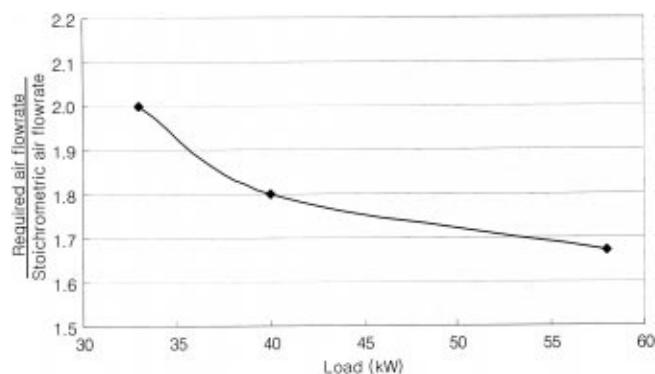


Fig. 14. Air flow rate to the catalytic combustor required the reformer temperature at 720 °C under load change.

상관관계를 알아보기 위하여 33 kW 부하일 때 총매 연소기로 유입되는 공기 유량을 변화시켜 가면서 개질기 출구 온도를 계산하여 보았다. Fig. 13에서 볼 수 있듯이 공기 유량이 증가함에 따라서 개질기 출구 온도가 낮아지는 것을 볼 수 있다. 그러므로 개질기 출구 온도가 설정치보다 높은 경우에는 공기의 유량을 늘리면 원하는 온도로 낮출 수 있다.

개질기 출구 온도를 증가시키기 위해서는 총매 연소기로 메탄을 공급하면 된다. 연료전지 시스템의 부하가 증가하면 추정기에서 계산된 수소 이용률이 증가하게 된다. 그러면 원료(메탄)량이 증가하게되고, 이에 따라 스템의 양도 증가한다. 또한 스택의 수소 이용률이 증가하면 anode-off gas의 양이 감소하게 되고, 개질기 온도를 일정한 값으로 유지하기 위하여 추가적인 메탄과 이를 완전 연소시킬 수 있도록 공기 공급량도 증가하여야 한다. Fig. 14는 각 부하별로 정상상태에 도달했을 때의 연비곡선이다. 그림에서도 볼 수 있듯이 부하증가에 따라 연비 곡선은 감소하는 경향을 나타낸다. 부하가 58 kW(수소 이용률 70%)일 때 anode-off gas를 완전 연소시키기 위해서는 최소한 5.5 kmole/h가 공급되어야 한다. 부하가 33 kW일 때(수소 이용률 70%) 총매 연소기로 공급되는 공기량은 6 kmole/h이다. 이는 부하가 58 kW로 증가하여도 anode-off

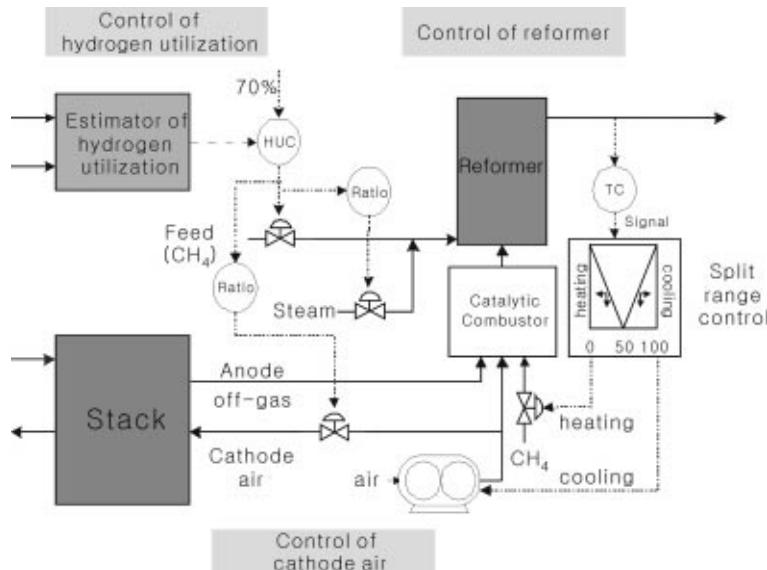


Fig. 15. Suggested control scheme for the PAFC.

gas를 완전 연소시킬 수 있는 양이다. 그러므로 공기 공급량은 메탄 연소에 필요한 양만큼만 증가하면 된다. 촉매 연소기에 공급되는 메탄의 양을 계속 늘려가면서 개질기 출구의 온도가 설정치( $720^{\circ}\text{C}$ ) 근처로 상승하도록 하며, 온도가 설정치까지 상승하면 개질반응에 의해 생산되는 수소양이 일정해지므로 스택의 수소 이용률 또한 일정한 값으로 유지될 것이다. 그러면 메탄공급을 차단하고 연비곡선상의 공급량 근처(Fig. 14)로 공기의 유량을 늘려가면서 anode-off gas만으로 개질기에 열을 공급하도록 해야한다.

#### 3-4. 전체 제어 시스템

앞의 여러 경우에 대한 전산모사를 통하여 부하 변동에 대한 연료전지 시스템의 제어는 스택의 수소 이용률, 양극의 산소 이용률, 개질기의 출구 온도 제어가 중심이되어야 함을 알 수 있었다. Fig. 15에 부하 변동에 대응하기 위한 시스템 제어 구성을 도시하였다.

수소 이용률 제어는 수소 이용률 추정기에서 원료(메탄)를 제어하고 메탄의 양에 따라서 스템의 양을 ratio 제어하게 된다. 개질기의 온도는 촉매 연소기에 공급하는 공기량과 메탄량을 조작변수로 해서 split range 제어를 하고 양극 산소 이용률 제어는 수소 이용률 추정기에서 사용된 산소량(수소 사용량의  $1/2$ )을 계산하여 이용률이 30%가 되도록 공기 유량을 제어하면 전체 시스템을 효과적으로 제어할 수 있다.

이와 함께 2-2-5에서 설명한 vent밸브를 이용한 스템/물 분리기의 압력제어도 행해져야 한다.

## 4. 결 론

본 연구는 실제로 LG-Caltex 정유(주)에서 운전하고 있는 인산형 연료전지 발전 시스템을 대상으로 HYSYS를 이용해서 인산형 연료전지 시스템의 각 단위 공정을 모델링하고, 각 공정을 연결하여 전체 시스템을 구성하였다. 정상상태 전산모사 결과를 공정 운전 데이터와 비교한 결과 모사기의 성능이 실제 공정과 상당히 일치하는 것을 확인할 수 있었다.

또한 부하 변동에 따른 공정 운전 특성을 분석하여 그에 대응하기 위해서 스택의 수소 이용률을 피제어 변수로 하는 제어 기법을 제시하였다. 이때 수소 이용률은 직접 추정이 불가능하므로 이를 추정하는 예측 모델을 함께 제안하였다. 적절한 수소 이용률을 결정하기 위해서 부하와 수소 이용률을 변화시켜 가면서 전산모사를 수행한 결과 스택의 수소

이용률을 70% 근처로 유지하면 부하 변화가 발생하더라도 anode-off gas 만을 연소시켜 개질 반응에 필요한 열을 공급할 수 있음을 알 수 있었다.

수소 이용률 제어 개념이 효과적으로 적용되기 위해서는 개질기 온도 제어와 물/스팀 탱크 압력제어도 함께 행해져야 하므로 각각의 제어 방법을 제안하고 이를 바탕으로 연료전지 시스템을 최적 제어루프를 구성하였다.

## 감 사

본 연구는 에너지관리공단의 에너지 기술 개발 사업 자금과 2002년도 서강대학교 교내 연구비 지원에 의하여 이루어졌음을 깊이 감사드립니다.

## 사용기호

y	: mole fraction
F	: Faraday constant [C/mole]
R	: load (resistance) [ $\text{k}\Omega$ ]
$\lambda$	: heat of vaporization of water [J/mole]
q	: steam fraction
c	: average specific heat [cal/g $^{\circ}\text{C}$ ]
S	: effective area of a unit cell [ $\text{cm}^2$ ]
n	: No. of unit cells in stack
$\eta$	: hydrogen utilization
i	: current density [ $\text{mA}/\text{cm}^2$ ]
m	: molar flow rate [mole/min]
a	: anode
c	: cathode
s	: stack
w	: cooling water

## 참고문헌

- Blomen, L. and Mugerwa, M., *Fuel Cell Systems*, Kluwer Academic Pub, New York(1994).

2. Whitaker, R., "Investment in Volume Building: the 'Virtuous Cycle' in PAFC," *J. of Power Sources*, **71**, 71-74(1998).
3. Komei, K., Masakazu, M., Hiromasa, Y. and Hidetoshi, S., "PAFC Operating Performance Verified by Japanese Gas Utilities," *J. of Power Sources*, **86**, 298-301(2000).
4. LG-Caltex Oil Co. Ltd, "Research for Development of Stack & Operating Technology of 50 kW PAFC," Ministry of Commerce, Industry and Energy, 179-198(2000).
5. Kortbeek, P. J., Ruijter, J. A. F., van der Laag, P. C., Hagg, F. and Barten, H., "A Dynamic Simulator for a 250 kW Class ER-MCFC System," *J. of Power Sources*, **71**, 278-280(1998).
6. Yang, J. C., Seo, S. H., Park, Y. S., Seo, H. S., and Lee, H. J., "Development of a 50 kW PAFC Power Generation System," Fuel Cell Symposium, **9**, 71-76(2002).
7. Yang, J. C., Park, Y. S., Seo, S. H., Lee, H. J. and Noh, J. S., "Development of a 50 kW PAFC Power Generation System," *J. of Power Sources*, **106**, 68-75(2002).
8. Hou, K. and Hughes, R., "The Kinetics of Methane Steam Reforming over a Ni-/Al<sub>2</sub>O Catalyst," *Chem. Eng. Journal*, **82**, 311-328(2001).
9. Larminie, J. and Dicks, A., *Fuel Cell Systems Explained*, John Wiley & Sons Ltd., Chichester(2000).
10. Lee, J. S., "Simulation and Consist of Control Algorithm for 50 kW PAFC," a Master's Thesis of Sogang University(2002).
11. Lee, K. S., Kim, J., Lee, J. S., "Modeling of stack," Fuel Cell Symposium, **8**, 215-220(2001).