# Aspen Dynamics<sup>TM</sup>와 ACM을 이용한 용융탄산염 연료전지 시스템의 모사 및 제어

전경연 · 곽하연 · 경지현 · 이태원\* · 문길호\* · 이기풍\* · 류이림\* · 양대륙

고려대학교 화공생명공학과 136-713 서울특별시 성북구 안암동 5가 \*두산중공업 기술연구원 연료전지개발센터 305-811 대전광역시 유성구 전민동 463-1 (2010년 11월 18일 접수, 2010년 12월 24일 채택)

# Simulation and Control of the Molten Carbonate System using Aspen Dynamics<sup>TM</sup> and ACM

Kyoung Yein Jeon, Ha Yeon Kwak, Ji Hyun Kyung, Ahrim Yoo\*, Tae Won Lee\*, Gi Pung Lee\*, Kil ho Moon\* and Dae Ryook Yang $^\dagger$ 

Department of Chemical Engineering, Korea University, 5-ga, Anam-dong, Seongbuk-gu, Seoul 136-713, Korea \*Fuel Cell System Development, Technology Institute, Doosan Heavy Industries Co., 463-1, Jeonmin-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-811, Korea (Received 18 November 2010; accepted 24 December 2010)

#### 요 약

최근 대체에너지에 대한 관심이 높아짐에 따라 수소에너지를 기반으로 하는 차세대 발전 장치인 연료전지 관련 기술 개발이 활발하게 이루어지고 있다. 특히, 고온 연료전지의 대표적인 형태인 용융 탄산염 연료전지(MCFC: Molten Carbonate Fuel Cell, 이하 MCFC)는 전력사업용으로의 높은 가능성을 인정받아 화석연료를 대체할 발전방식으로 평가 받고 있다. 본 연구에서는 Aspen Custom Modeler(ACM™)에서 평형반응식을 이용하여 스택 모델을 구성한 후, Aspen Plus™에서 BOP(Balance of Plant) 시스템과 스택을 연결하여 전체 MCFC 발전 시스템의 정상상태를 모사하였다. 모델의 유효성을 입증하기 위해서 전류밀도, 연료이용률, S/C ratio, 재순환 흐름 비와 같은 주요 조업변수에 따른 셀 전압, 전력, 효율 등 시스템의 성능을 분석하였다. 그리고 Aspen Dynamics™에서 PID제어 방식을 적용하여 제어루프를 구성하였고 부하변화, 설정점 변화, 재순환 흐름비 변화에 따른 각각의 사례연구를 통하여 전체 시스템의 성능 변화를 예측하였다. 그 결과 연료이용률과 전류밀도의 변화에 따른 전체 시스템의 최대 발전 효율 및 출력전압을 위한 운전조건을 제안하였다.

Abstract – Recentincreasing awareness of the environmental damage caused by the CO<sub>2</sub> emission of fossil fuelsstimulated the interest in alternative and renewable sources of energy. Fuel cell is a representative example of hydrogen energy utilization. In this study, Molten Carbonate Fuel Cell system is simulated by using Aspen<sup>TM</sup>. Stack model is consisted of equilibrium reaction equations using ACM<sup>TM</sup>(Aspen Custom Modeler). Balance of process of fuel cell system is developed in Aspen Plus<sup>TM</sup> and simulated at steady-state. Analysis of performance of the system is carried out by using sensitivity analysis tool with main operating parameters such as current density, S/C ratio, and fuel utilization and recycle ratio.In Aspen Dynamics<sup>TM</sup>, dynamics of MCFC system is simulated with PID control loops. From the simulation, we proposed operation range which generated maximum power and efficiency in MCFC power plant.

Key words: MCFC, Modeling, Simulation, PID

# 1. 서 론

최근 환경파괴 및 화석연료 고갈에 따른 대안으로 청정에너지에 대한 관심이 고조됨에 따라 미래에너지 매체로 우수한 특성을 지니 는 수소에너지 기술개발에 대한 필요성이 증대되고 있다. 이에 따라 수소에너지를 기반으로 하는 차세대 발전장치인 연료전지가 각광을 받고 있으며 연료전지 관련 기술개발도 활발하게 이루어지고 있다. 연료전지는 연료가 가지고 있는 화학에너지를 전기화학 반응에 의해 직접 전기에너지로 변환시키는 일종의 발전장치이다. 기존 발전 방식에 비해 높은 전력효율을 기대할 수 있을 뿐만 아니라 공해요인이 거의 없는 고효율, 청정 발전장치이다[1,2]. 고온 연료전지의

<sup>&</sup>lt;sup>†</sup>To whom correspondence should be addressed. E-mail: drying@prosys.korea.ac.kr

<sup>‡</sup>이 논문은 고려대학교 홍석인 교수님의 정년을 기념하여 투고되었습니다.

대표적 형태인 용융탄산염 연료전지(MCFC: Molten Carbonate Fuel Cell, 이하 MCFC)는 약 650 °C의 고온에서 운전되기 때문에 천연가스, 석탄가스 등의 다양한 연료를 사용할 수 있다는 장점이 있다. 특히, 발전 시 배출되는 고온의 증기를 이용하여 복합발전 이 가능하기 때문에 주요 선진국에서는 MCFC를 전력 사업용으로 상 업화하기 위한 연구개발이 활발히 이루어지고 있다[3]. 1980년 대 에는 2차원 스택 모델을 구성하여 온도나 전류밀도의 분포에 대해 모사한 연구와 연료전지의 분극 특성을 이용하여 Scaled-up 방식으 로 실험 결과와 비교한 연구가 있으나 이들 연구는 계산 방식에 있 어서 많은 제약 조건과 가정이 따르는 등 기존 기술의 한계로 인해 정확성이 떨어진다[4,5]. 이후 본격적으로 연구가 활발히 전개된 1990년에는, W. He는 상용 모사기인 CFD의 Speed-up Code를 이 용하여 스택 내의 물질 흐름이나 열 전달형태를 모사하였고, T. Okada는 Matlab의 Simulink를 이용하여 직접 개질 방식의 스택을 모사하였으나 이와 같은 연구들은 주로 Simplified된 모델을 모사 하였다는데 한계점이 있다[6,7]. 2000년대 이후에는 상용화를 위해 보다 구체적이고 다양한 방식의 접근이 이루어졌다. F. Yoshiba는 수치 해석을 통한 전압분포를 분석함으로써 전압 차이에 따른 스택 의 변화를 예측하였다. Michael D. Lukas는 미분 방정식으로 3차원 의 Dynamic 스택 모델을 구성하였으며, 2002년도에는 내부개질형 시스템에 PI 제어 모델을 구성함으로써 부하 변화에 따른 시스템의 성능을 예측하였다[8,9,10]. 주로 스택에 관한 모사는 활발히 이루 어져왔으나, 전체 시스템과의 연계를 고려한 BOP(Balance of Plant) 시스템에 대한 모사는 주로 Simplified 형태로 구성되는 등 연구가 미미한 실정이다. W. Zhang은 Aspen Plus<sup>TM</sup>을 이용하여 SOFC (Solid Oxide Fuel Cell) 시스템을 모사하였다. 이와 같은 연구는 주 요 조업 변수를 고려하여 시스템의 성능을 체계적으로 분석하였다 는 점은 주목할 만하나 정상상태만을 고려한 모델이라는 한계가 있 다[11]. 본 연구에서는 Aspen Dynamics<sup>TM</sup>을 이용하여 용융탄산염 연료전지 발전 시스템을 모사하고 부하 변동이 일어났을 때 시스템 을 안정화시키며 빠른 부하 추종 능력을 갖도록 제어한다. ACM<sup>TM</sup> (Aspen Custom Modeler)을 통해서 스택 모델을 구성한 후, Aspen Plus<sup>TM</sup>을 이용하여 스택과 BOP를 연결하여 전체 시스템의 정상상 태를 모사한다. 그리고 Aspen Dynamics<sup>TM</sup>에서 PID제어 방식을 적 용하여 제어 루프를 구성하고 전체 시스템의 발전 효율을 최대로 유 지시키는 운전 조건을 연구하였다.

#### 2. MCFC 시스템

용융탄산염 연료전지(MCFC:Molten Carbonate Fuel Cell, 이하 MCFC)는 탄산리튬(Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>), 탄산 칼륨(K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>), 탄산나트륨(Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>) 등의 용융 알칼리 금속 탄산염을 전해질로 사용한다. 단일 전지의 연료극(Anode)에 수소를, 공기극(Cathode)에는 산소와 이산화 탄소를 도입한다. 수소는 공기극에서연료극으로 전해질을 통해 이동한 음의 전하를 가진 탄산 이온 CO<sup>2</sup> 과 결합한다. 이 반응으로 방출된 전자는 외부 회로를 통하여 공기극으로 이동하며 외부로 끌어내는 발전 전류를 구성한다. 한편, 공기극에서는 외부에서 유입된 공기(산소)가이산화탄소 및 전자와 결합하여 탄산 이온 CO<sup>2</sup> 을 발생시킨다(식 (1-3)). 연료극과공기극의 전극반응이 연속적으로 진행되면 외부회로를 통해공기극에서 연료극 방향으로 전류가 흐르게 되어 지속적으로 전력을 얻게 된다[12].

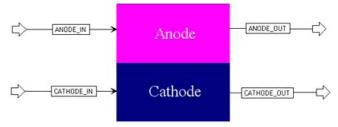


Fig. 1. Stack model in ACM<sup>TM</sup>.

Anode: 
$$H_2 + CO_3^{2-} \rightarrow H_2O + CO_2 + 2e^-$$
 (1)

Cathode: 
$$\frac{1}{2}O_2 + CO_2 + 2e^- \rightarrow CO_3^{2-}$$
 (2)

Overall: 
$$H_2 + \frac{1}{2}O_2 + CO_2 \rightarrow H_2O + CO_2$$
 (3)

#### 2-1. 스택 모델

Aspen<sup>TM</sup> 내에는 스택에 관한 모듈이 따로 지원되는 것이 아니므로 ACM<sup>TM</sup>(Aspen Custom Modeler)을 통하여 스택 모델을 Fig. 1과 같이 구성하였다. 스택 내에서는 큰 흡열반응인 메탄 개질반응 (Methane Steam Reforming Reaction, 식 (4))과 발열반응인 수성가스 전환반응(Water Gas Shift Reaction, 식 (5))이 일어난다.메탄 개질반응은 메탄을 원료로 한 반응으로써 수소와 일산화탄소를 생성하고 수성가스 전환반응은 일산화탄소를 제거함과 동시에 많은 양의수소를 생산한다. 이 두 가지 반응은 동시에 진행되는 가역 반응으로써 평형에 도달하게 되며 여기서, 두 반응의 평형 모델식을 도입할 수 있다[13].

$$CH_4 + H_2O \leftrightarrow CO + 3H_2$$
 (4)

$$CO + H_2O \leftrightarrow CO_2 + H_2 \tag{5}$$

다음으로 에너지 수지식(Energy balance)을 고려한 스택의 온도는 입구온도와 출구온도를 바탕으로 동특성을간략화하기 위해 구성된 전달 함수(Transfer function)을 도입하여 계산하였다.

$$y = T_{out}, u = T_{in}$$
 (6)

$$\frac{y}{u} = \frac{k}{\tau s + 1} e^{\theta s} \tag{7}$$

$$\tau \frac{dy}{dt} + y = ku(t - \theta) \tag{8}$$

$$\frac{\mathrm{d}y}{\mathrm{d}t} = \frac{1}{\tau}(-y + k\mathbf{u})\tag{9}$$

스택의동특성을 나타내기 위하여 t의 값을 물질과 에너지 전달 속도의 차이를 고려하여 설정하였다. 따라서 온도의 t 값은 물질 수지식의 t의 5배로 설정하였다.

#### 2-2. BOP(Balance of Plant) 시스템

Aspen Plus<sup>TM</sup> 내에서 BOP 시스템은 연료공급기(LNG, Water, Air), Humihex(Humidified Heat Exchanger), 개질기(Preconverter), 촉매 연소기(Combustor) 등으로 구성된다. 전체 흐름은 Fig. 2에 표시된 것처럼 스택을 중심으로 연료극(Anode)과 공기극(Cathode) 흐름으로 구분되며 각각의 흐름에는 재순환(Recycle, Recirculation) 흐름을 추가로 고려하였다.

MCFC 시스템의 입구 흐름은 천연가스, 물, 공기로 구성된다. 이들의 입구 조건은 전류밀도 1,200 A/cm² 기준으로 계산되었다.

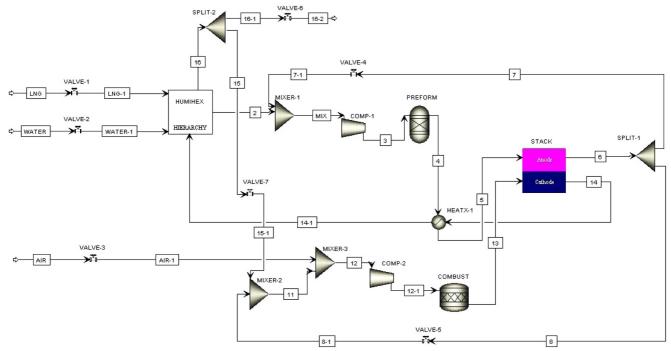


Fig. 2. MCFC system in Aspen Plus<sup>TM</sup>.

MCFC 시스템에 공급되는 연료는 천연가스와 고온의 증기(Steam)가 혼합된 형태로써 이 혼합된 흐름은 Preconverter 내에서 초기 반응물질 인 수소로 개질 된다. 증기는 Preconverter 내 촉매개질 반응에서 CO의 형성을 방지하는 역할을 하기 때문에 과량의 증기가 주입되며, 증기의 양은 S/C(Steam to carbon) ratio에 의해 결정된다. Preconverter 에서는 메탄보다 세탄가가 높은탄화수소(Hydrocarbon) 즉,  $C_2$  이상의 탄화수소를 제거하는 Cracking 반응이 일어나 Soot formation을 방지하고 부분적으로 약  $5\sim10\%$ 의 메탄 개질반응이 일어난다.촉매연소기는 탄산염 이온( $CO_3^2$ )을 생성하는데 필요한 예열된 산소( $O_2$ )와 이산화탄소( $CO_2$ )를 공기극(Cathode)에 공급해주는 역할을 한다. 연료극(Anode)에서는 약  $50\sim80\%$ 의 연료가 반응하고 약  $20\sim50\%$  정도의 미 반응된 연료가 tail gas로 나온다. 이 때, tail gas 내의 연료(수소)가촉매연소기에서 남은 수소를 전부 연소시키는 반응이 일어나 주입된 공기(Stream AIR)의 온도를 높이게 된다.

#### 3. Sensitivity Analysis

Aspen  $Plus^{TM}$  내 Model Analysis를 이용하여 주요 조업변수에 따른 MCFC 시스템의 성능을 분석하였다. 주요 조업변수로는 연료이용률, 전류밀도, S/C ratio, 재순환 흐름 비를 선택하였고 이에 따른 시스템의 성능을 분석한 결과는 다음과 같다.

#### 3-1. 전류 밀도 영향

Fig. 3의 결과를 살펴보면 전류밀도가 0.06에서 0.18까지 증가함에 따라 전극 손실도 같이 증가하여 셀 전압과 효율은 감소하는 경향을 나타낸다. 반면 전력량은 전류밀도와 스택 전압의 곱에 비례하므로 셀 전압 감소 폭에 비해 전류밀도의 증가 폭이 크고 전류밀도와 같이 증가함을 알 수 있다. 전류밀도가 증가함에 따라 산소를 공급하는 역할을 하는 공기의 공급량도 같이 증가하는 것을 확인할 수 있는데 이는 스택의 온도를 떨어뜨리는 원인이 된다. 그러므로 전류밀

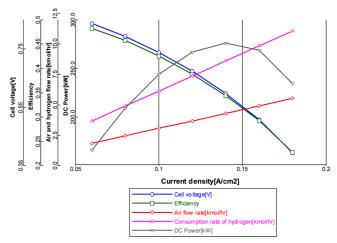


Fig. 3. Effects of Current density on the Cell voltage.

도에 따른 시스템의 특성을 분석해본 결과, 전류 밀도가 낮을 때 오히려 높은 효율을 기대할 수 있음을 확인할 수 있다.

그러나 이는 또한 낮은 전력량을 야기하므로 높은 출력을 기대하기 위해서는 Cell 수를 증가시켜야 하므로 결국, Capital cost를 증가시키는 원인이 된다.

### 3-2. S/C ratio 영향

S/C ratio는 물 분자와 C(탄소) 원자의 비로써 수증기 개질반응에 따른 메탄과 수소 및 연료이용률에 영향을 끼친다. S/C ratio가 증가한다는 것은 곧 물 분자량의 증가를 의미하므로 S/C ratio를 1.3에서 4.6까지 증가시킴에 따라 물의 양도 같이 증가하게 된다. 따라서 Preconverter 내의 수증기 개질 반응이 촉진되므로 반응물인 메탄이 감소하고 생성물인 수소의 양이 증가하게 된다. 따라서 수소의 증가는 곧 공급되는 연료의 양이 증가함을 의미하므로 이는 연료이용률의 감소시키는 원인이 된다. 따라서 너무 높은 값의 S/C ratio는 결

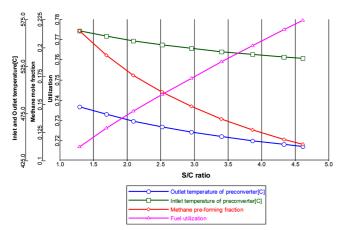


Fig. 4. Effects of S/C ratio on the Utilization, Methane pre-reforming fraction and inlet and outlet temperature of Preconverter.

국 더 큰 크기의 Preconverter의 설치를 요구하게 되므로 Capital cost 를 증가시키는 원인이 된다. 또한 Fig. 4에서 제시된 것과 같이 개질 반응은 큰 흡열반응으로써 반응이 촉진됨에 따라 Preconverter의 입구 및 출구의 온도를 감소시키고 이는 곧 스택의 입구 온도를 낮추는 결과를 초래한다.

#### 3-3. 연료이용률 영향

연료이용률은 중요한 조업변수 중의 하나로서 전체 시스템의 효율에 큰 영향을 끼친다.연료이용률(Utilization,  $U_p$ )은 다음과 같이 정의된다.

$$U_f = \frac{\mbox{전기화학반응에 의한 수소소모속도}(\mathbf{q}_{\mathrm{H},})}{\mbox{실제연료전지에 수소공급속도}(\mathbf{q}_{\mathrm{H},}')}$$
 (10)

연료이용률에 따른 효율 및 수소공급속도의 변화를 Fig. 5에 도시 하였다. 연료이용률을 약 0.6에서 0.94까지 증가시켰을 때 수소가

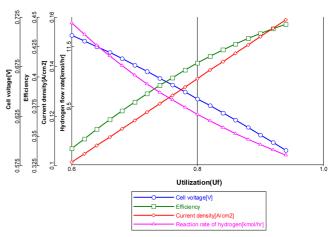


Fig. 5. Effects of  $U_f$  on the Cell voltage, Efficiency, Current density and Reaction rate of hydrogen.

많이 소모됨에 따라 연료극으로 들어가는 수소공급 속도가 감소하는 경향을 보였다. 반면 효율은 셀 전압과 연료이용률의 곱에 비례하므로 연료이용률이 증가함에 따라 같이 증가하는 경향을 나타내었다. 이는 연료가 많이 소모됨에 따라 전극 손실(Polarization loss)이 증가하여 셀 전압은 감소하게 되나, 셀 전압이 효율에 미치는 영향은 크지 않기 때문에 효율은 연료이용률에 비례하는 것임을 확인할 수 있다. 또한 수소소모속도가 증가함에 따라 전류밀도도 같이 증가하는 것을 확인할 수 있다.

# 4. 동적 모사 및 제어

Aspen Dynamics  $^{TM}$ 에서MCFC 시스템의 동적모사를 수행하였다. 제어하고자 하는 조업 변수는 총 3개로서 메탄 유량, S/C ratio에 따른 물 유량, 스택 온도이다. 따라서 총 3개의 PID Controller를 추가하였으며 Fig. 6에 도시하였다.

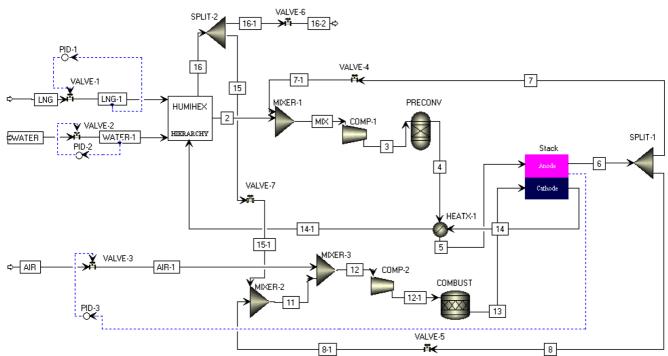


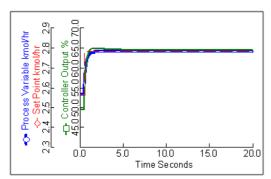
Fig. 6. Control loop of MCFC system in Aspen Dynamics<sup>TM</sup>.

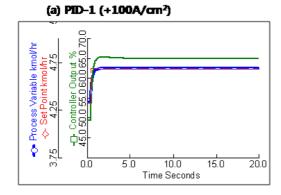
Korean Chem. Eng. Res., Vol. 49, No. 4, August, 2011

**Table 1. Parameter Tuning of Controller** 

Controller -	Tuning parameter			Controller
	Gain	Integral time	Derivative time	mode
PID-1	0.943	2.4	0.6	Reverse
PID-2	1.206	2.4	0.6	Reverse
PID-3	3.146	2.4	0.6	Direct

PID-1은 공급되는 메탄 유량을 제어한다. 연료인 수소의 공급속도는 메탄의 유량에 의해 조절된다. 따라서 메탄 유량을 조절함으로써 연료이용률을 72%로 일정하게 유지하는 것을 제어 목표로 한다. 다음으로 PID-2는 1.68로 설정된 S/C ratio에 맞게 물의 공급량을 제어한다. PID-3는 스택 온도를 제어한다. 공기는 과량으로 주입되어 산소를 공급하고 스택 온도를 조절하여 Hot spot과 같이 스택의 과열로 인해 생기는 문제를 방지한다. 각각의 제어기에 대한 Parameter Tuning은 Open loop test를 통한 Auto tuning 방법을 이용하였으며 각각의 data는 아래 Table 1에 나타내었다. 세 가지 사례를 통해서 실제 조업 상황에서의 변화를 예측하고 사례별 제어전략을 구성하였다.





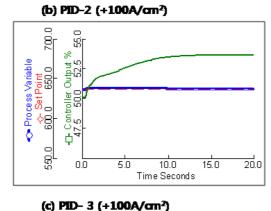
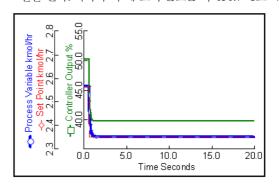
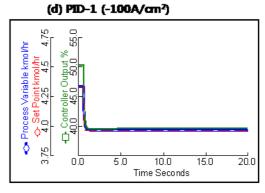


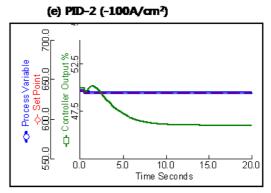
Fig. 7. Simulation results by increasing/decreasing current density.

#### 4-1. 부하 변화

전류 밀도가 변하였을 경우(±100 A/m²), 즉 부하 변동 시 제어변 수와 조작 변수의 거동을 나타내었다. 이 경우는 실제 조업 시 부하 가 변화하게 되면 연료소비량이 일시적으로 증가 또는 감소하게 되 어연료이용률에 영향을 주므로이를 정상으로 유지하기 위한 제어를 보여주는 예이다. 먼저 전류 밀도를 약 100 A/m² 증가시켰을 경우는 시스템은 Fig. 7의 (a)~(c)와 같은 거동을 보인다. PID-1 제어기에서 제어변수인 메탄유량을 증가한 연료 공급량에 맞게 유지시킴으로써 수소공급속도를 조절하여 연료이용률을 72%로 유지하도록 제어한 다. 또한 PID-2 제어기에서는 증가한 메탄 유량만큼 물의 유량도 S/ C ratio 1.68만큼 증가한 후 일정하게 유지한다. 또한 PID-3 제어기 에서는 과잉 공기를 제어하는 역할을 한다. 부하가 증가함에 따라 반 응이 많이 일어나게되어 스택의 온도는 증가한다. 만약 이 때 스택 온도가 과도하게 높아지게 되면 Hot spot이나 전해질이 부식되는 현 상이 발생하므로 Excess Air 즉, 남은 수소를 연소시키는 역할을 하 는 산소 이외의 과량으로 공급된 산소가 스택 온도를 낮추어주는 역 할을 한다. 따라서 이 때 스택 온도는 약 636.7 °C로 제어된다. 반대







(f) PID-3 (-100A/cm²)

로 전류밀도를 약 100 A/m² 감소시켰을 경우(Fig. 7의(d)~(f)) 먼저 부하가 감소함에 따라 연료소비량과 연료공급량 이 감소하다. 따라서 PID-1 제어기에서 감소한 메탄유량을 일정하게 유지시킴으로써 수소공급속도를 조절하여 연료 이용률을 72%로 유지하도록 제어한다. PID-2 제어기에서는 S/C ratio 1.68만큼 감소한 메탄 유량에 비례하여 물의 유량은 감소한 후 유지된다. PID-3 제어기에서는 감소한 스택의온도를 제어하기 위하여 Excess Air의 유량을 감소시킴으로써 약 633.7 °C로 스택 온도를 유지시킨다.

# 4-2. 설정점(Set Point) 변화

부하 변화가 없을 때, 메탄유량과 스택 온도의 설정점에 변화를 주어 시스템의 성능 변화를 예 측해보았다. 먼저 메탄유량의 설정점이 변하였을 경우(±10%), 제어 변수와 조작 변수의 거동을 Fig. 8에 나타내었다. 이 경우는 부하 변화는 없으나 메탄유량의 설정점에 변화를 주게 되면 수소생산량과 출력전압에 영향을 끼치게 되므로 이 때시스템을 정상적인 출력 범위 내에서 조업하기 위한 제어를 보여주는 예이다. 먼저 메탄유량의 설정점을 약 10% 증가시켰을 때 시스

템은 Fig. 8의 (a)~(c)와 같은 거동을 보인다. PID-1 제어기에서는 증 가한 설정점만큼 메탄유량이 증가하게 되고 이는 수소 공급속도의 증가를 야기시킨다. 따라서 부하변화가 없으므로 수소소모속도가 일 정한 상태에서 수소의 공급속도만 증가하게 되므로 연료이용률은 72%에서 약 65%까지 감소하게 된다. PID-2 제어기에서는 증가한 메탄 유량만큼 물의 유량도 S/C ratio(1.68)에 따라 증가하여 일정하 게 유지된다. 반응이 많이 진행됨에 따라서 반응열이 발생하고 결국 스택의 온도는 올라가게 된다. PID-3 제어기에서는 Excess Air의 유 량을 늘려스택 온도를 원래대로 낮추어 635.2 ℃로 유지한다. 다음 으로 메탄유량의 설정점을 약 10% 감소시켰을 때 PID-1 제어기 에 서는 설정점의 변화에 따라 메탄유량이 감소하게 되고 결국 수소의 공급속도를 감소시키게 되므로 연료이용률은 72%에서 약 80%까지 증가하게 된다. 또한 PID-2 제어기에서는 감소한 메탄 유량만큼 물 의 유량도 S/C ratio(1.68)에 따라 감소한다. 반응양의 감소에 따라 스택의 온도도 감소하여 PID-3 제어기에서는 Excess Air의 유량을 줄여 스택 온도를 원래대로 높여 635.2 ℃로 유지한다(Fig. 8의  $(d)\sim(f)$ ).

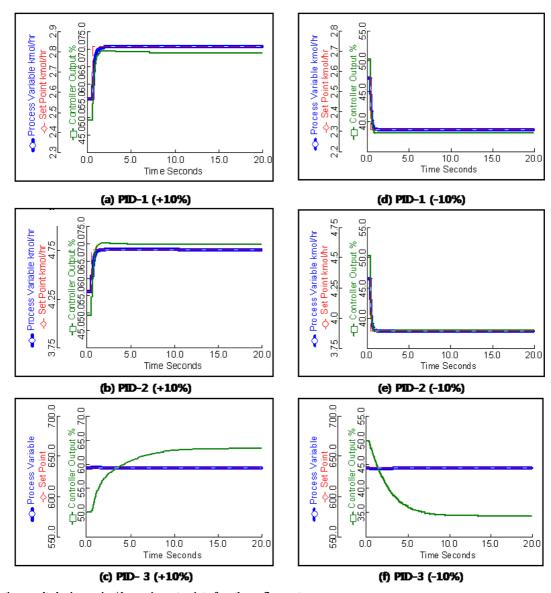


Fig. 8. Simulation results by increasing/decreasing set point of methane flow rate.

Korean Chem. Eng. Res., Vol. 49, No. 4, August, 2011

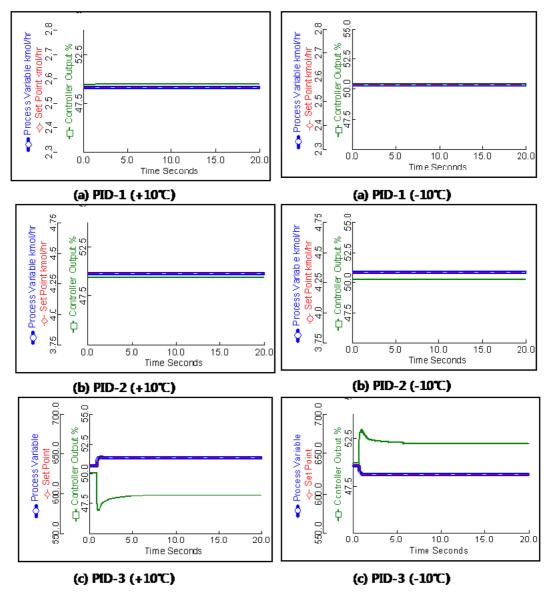


Fig. 9. Simulation results by increasing/decreasing set point of stack's temperature.

다음은 스택온도의 설정점을 변화시켜 보았다. Fig. 9 에스택 온도의 설정점이 변하였을 경우(±10 °C), 제어 변수와 조작 변수의 거동을 나타내었다. 이 경우는 스택온도가 변화하게 되면 용융탄산염의 활동도나 전해질의 부식에 영향을 끼치게 되므로 이 때 시스템의 성능을 높게 유지하면서 정상적인 출력 범위 내에서 조업하기 위한 제어를 보여주는 예이다. 먼저 스택온도의설정점을 약 10 °C 증가시켰을 때 PID-1과 PID-2에서 나타나는 변화는 거의 없으며 이 때 PID-3 제어기에서 Excess Air의 유량을 줄여 스택온도를 설정 점에 맞추어유지한다. 다음으로스택온도의설정점을 약 10 °C 감소시켰을때 PID-3 제어기에서 Excess Air의 유량을 늘려 스택온도를 설정점에 맞추어 감소시킨다.

#### 4-3. 재순환 흐름비의 변화

부하 및 설정점의 변화가 없을 때, 재순환 흐름 비가 시스템의 성능에 미치는 영향에 대해 알아보았다.재순환 흐름비가 변화하게 되면 연료극으로 유입되는 유량이 변화하게 되고 공기극으로 유입되는

미반응된 수소의 양이 변화하여 스택온도에 영향을 미치게 된다. 따 라서 본 사례연구는 이러한 경우에 시스템을 정상적인 출력 범위 내 에서 조업하기 위한 제어를 보여주는 예이다. Fig. 10에 재순환 흐름 의 유량이변하였을 경우(±10%) 제어변수와 조작변수의 거동을 나타 내었다.먼저 Anode recycle stream의 재순환 흐름비를 10% 증가하 면, 스택의 연료극으로 유입되는 유량이 증가하게 된다. 따라서 PID-1 제어기에서는 부하변화 없이 수소 공급량만 증가하게 되므로 메탄 유량을 원래 값에 맞게 유지함에 따라 연료이용률을 일정하게 유지 시킨다. 또한 PID-2 제어기에서도 S/C ratio(1.68)에 따라 일정하게 물의 유량을 제어한다. 반면, 연료극의 재순환 비가 증가함에 따라 공기극의 재순환 비는 감소한다.따라서 재순환되는 미반응 수소의 양이 감소하게 되므로 연소반응이 덜 일어나게 되어 스택온도의 감 소를 초래한다. 따라서 PID-3 제어기에서는 공기 유량을 감소시킴으 로써 스택 온도를 원래 값인 635.2 °C로 유지시킨다(Fig. 10의(a)~ (c)). 다음으로 재순환 흐름비를 10% 감소시키면스택의연료극으로 유입되는 유량이 감소한다. 따라서 PID-1와 PID-2 제어기에서는 연

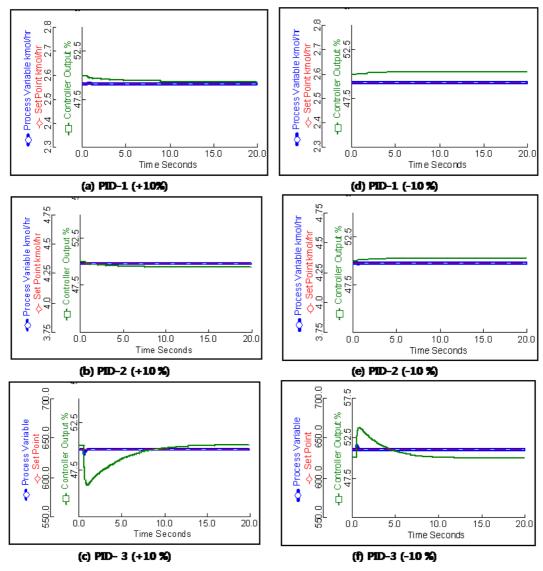


Fig. 10. Simulation results by increasing/decreasing recycle ratio.

료이용률을 일정하게 유지시키기 위해 메탄 유량과 S/C ratio에 따른 물의 유량을 제어하게 된다. 또한 공기극의 재순환 비가 감소함에 따라 스택온도는 증가하게 된다. 따라서 PID-3 제어기 에서는 공기 유량을 증가시켜 스택온도를 원래 값인 635.2 °C로 제어한다(Fig. 10의 (d)~(f)).

## 5. 결 론

본 연구에서는 Aspen<sup>TM</sup>을 이용하여 용융탄산염 연료전지 발전시스템을 모사하였다. 스택 모델은  $ACM^{TM}$ (Aspen Custom Modeler) 내에서  $CH_4$ ,  $H_2$ ,  $O_2$ ,  $H_2O$ ,  $CO_2$ 의 key components를 도입하여 평형 모델식을 구성하였고, 부하 변화에 따른 시스템의 영향을 고려하기 위해  $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $H_2$ 의 물질 구성식에, 소모되는 수소의 몰 유량을 추가로 고려하여 전류밀도에 따른 반응량의 변화를 나타내었다. 다음으로 Aspen Plus<sup>TM</sup>에서 스택모델과 BOP 시스템을 연결하여 약 266.7 kW급 연료전지 발전 시스템을 모사하였다. Sensitivity analysis를 통해 연료이용률, 전류밀도, S/C ratio, 재순환 흐름 비와 같은 주요 조업 변수에 따른 셀 전압, 전력, 효율과 같은 시스템의 성능을 분석하였

고 연료이용률 72%, 전류밀도 1200 A/m², S/C ratio 1.68의 MCFC 시스템의 기준 값으로 설정하였다.

Aspen Dynamics<sup>TM</sup>에서는 전통 제어방식인 PID 방식을 적용하여 총 3개의 PID 제어기 추가하여 제어루프를 구성하였다. 먼저, PID-1 제어기에서는 현재 기준 값인 72%의 연료이용률을 유지하기 위하 여 메탄유량을 제어하였다. 예를 들어 사례연구 중 부하가 증가하는 경우, 수소 소비량이 증가함에 따라 연료이용률이 증가하게 된다. 따 라서 이 때 메탄유량도 같이 증가한 값으로 유지시키며 결과적으로 현재 설정 값인 72%의 연료이용률을 유지하였다. PID-2 제어기에서 는 1.68의 기준 값을 갖는 S/C ratio의 비에 따라 메탄 유량이 변화 한 양만큼 물의 공급량을 제어하였다. PID-3 제어기에서는 Excess Air의 양을 조절하여 스택의 온도를 제어하였다. 스택의 온도는 현재 약 635 ℃로써 용융탄산염 연료전지와 같이 고온 연료전지의 경우, 스택의 온도가 너무 낮은 경우에는 용융탄산염의 활동도가 저해되고 반대로 스택의 온도가 너무 높게되면 전해질 부식이 증가하여 스택 의 성능을 떨어뜨리게 되므로 스택 온도 제어는 성능 향상에 있어서 중요한 의미를 갖는다. 이와 같이 Aspen Dynamics  $^{TM}$ 에서 구성한 제 어루프는 실제 조업 시 갑작스러운 부하변화나 연료공급량의 변화에

따른 시스템의 성능을 예측하거나 분석하는데 유용하게 사용될 것이라고 예상된다. 또한 본 연구에서는 전통제어방식인 PID방식만을 적용하였으나 추후에 MPC(MPC: Model Predictive Control)를 도입한다면 각각의 주요 조업변수에 따른 최적화를 구현하여 시스템의 성능을 좀 더 체계적으로 분석하여 제어 성능평가의 향상을 가져오리라 예상된다.

#### 감 사

본 연구는 2008년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지 기술평가 원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다(2008-N-FC12-J-04-2100).

# 사용기호

k : Steady-state gain

 $\mathbf{q}_{H_2}$ : Consumption rate of hydrogen[kmol/hr]  $\mathbf{q}_{H_2'}$ : Reaction rate of hydrogen[kmol/hr]  $\mathbf{T}_{im}$   $\mathbf{T}_{out}$ : Inlet and Outlet temperature of stack[K]

u : Deviation variable of input

U<sub>f</sub> : Fuel utilization

y : Deviation variable of output

τ : Time constant[sec]

#### 참고문헌

- 1. Kirubakaran, A., Jain, S. and Nema, R. K., "A Review on Fuel Cell Technologies and Power Electronic Interface," *Renew. Sust. Energ. Rev.*, **13**, 2430-2440(2009).
- Lim, H. C., "Development of a 100 kw Class Molten Carbonate Fuel Cell System, Journal of Power Sources: Step 1: Operation and Analysis of 25 kW MCFC system," J. Power Sources., 283,

- 16-27(2000).
- Lim, H. C. and Koh, J. H., "Operation Characteristics and Analysis of Temperature Gradients in a 5-kW Molten Carbonate Fuel Cell Stack," *Trans. the Korean Hydrogen & New Energy Society*, 10(2), 107-118(1999).
- 4. Wolf, T. L. and Wilemski, G., "Molten Carbonate Fuel Cell Performance Model," *J. Electrochem. Soc.*, **130**, 48-55(1983).
- Sampath, V., Sammells, A. F. and Selman, J. R., "A Performance and Current Distribution Model for Scaled-up Molten Carbonate Fuel Cell," J. Electrochem. Soc, 127, 79-85(1983).
- Lukas, M. D., Lee, K. Y. and Ghezel-Ayagh, H., "Development of a Stack Simulation Model for Control Study on Directreforming Molten Carbonate Fuel Cell Power Plant," *IEEE Trans. Energy Conversion*, 14(4),1651-1657(1999).
- 7. He, W., "The Dynamic Performance of a Molten Carbonate Fuel Cell in Power-generation Systems," *J. Power Sources*, **52**, 179-184(1994).
- 8. Yoshiba, F., Abe, T. and Watanabe, T., "Numerical Analysis of Molten Carbonate Fuel Cell Stack Performance: Diagnosis of Internal Conditions Using Cell Voltage Profiles," *J. Power Sources*, **87**, 21-27(2000).
- Lukas, M. D., Lee, K. Y. and Ghezel-Ayagh, H., "An Explicit Dynamic Model for Direct Reforming Carbonate Fuel Cell Stack," *IEEE Trans. Energy Conversion*, 16(3), 289-295(2001).
- Lukas, M. D., Lee, K. Y. and Ghezel-Ayagh, H., "Modeling and Cycling Control of Carbonate Fuel Cell Power Plants," *Control Engineering Practice*, 10(2), 197-206(2002).
- 11. Zhang, W., Croiset, E., Douglas, P. L., Fowler, M. W. and Entchev, E., "Simulation of a Tubular Solid Oxide Fuel Cell Stack Using AspenPlus(TM) Unit Operation Models," *Energy Conversion and Management*, 46(2), 181-196(2005).
- 12. Kuto, D., Yamamoto, O., Iwahara, H. and Yun, C. J., *Fuel cell*, Gyeomjisa(2007).
- Kim, D. H. and Lee, T. J., "Kinetics of Methane Steam Reforming," Korean J. Chem. Eng., 29(4), 396-406(1991).