

## CFD를 이용한 용융탄산염 연료전지 스택의 수치모사

이갑수<sup>†</sup> · 조현호<sup>\*</sup>

김포대학 환경시스템과

\*서울대학교 화학생명공학부(현소속 : GS Caltex(주))

(2005년 10월 25일 접수 : 2005년 11월 15일 채택)

## Numerical Analysis of Molten Carbonate Fuel Cell Stack Using Computational Fluid Dynamics

Kab Soo Lee<sup>†</sup> and Hyun Ho Cho<sup>\*</sup>

Department of Environmental System Engineering, Kimpo College, Kimpo 415-761, Korea

\*School of Chemical & Biological Engineering, Seoul National University, Seoul 143-701, Korea

(Current Address : GS Caltex Co., Daejeon, Korea)

(Received October 25, 2005 : Accepted November 15, 2005)

### 초 록

상용 CFD 프로그램인 FLUENT v5.3을 이용하여 용융탄산염 연료전지 스택의 수치 모사를 행하였다. FLUENT내에 포함되어 있는 보존식들을 이용하면서, 사용자 정의함수를 이용하여 포함시킨 코드를 통해 전기화학적 반응과 부반응인 수성가스전이반응에 의한 질량과 가스 조성 변화 및 열이동을 고려하여 정확한 계산 결과를 얻고자 하였다. 모사에 사용된 스택은 6 kW급과 25 kW급 스택으로 각각 20개와 40개의 단위전지를 수직으로 적층한 형태이며 스택내로 주입되는 가스는 coflow형태로 각각의 채널을 흘러가게 설계되어 있다. 모사를 통해 알아본 스택 내 압력분포는 가스 흐름방향으로 압력강하가 일어나며 anode 채널보다 cathode 채널에서의 압력차가 더 크게 나타났다. 채널 내 속도분포는 전극 반응에 의한 질량 및 부피변화로 인해 anode 채널에서는 가스흐름 방향으로 속도가 증가하는 반면 cathode 채널에서는 속도가 감소하는 경향을 보였다. 스택 내 온도분포는 가스 흐름방향으로 증가하는 경향을 보였고, 계산결과와 실험결과가 대체로 일치함을 확인할 수 있었다. 수성가스전이반응을 포함한 모델과 그렇지 않은 모델을 비교한 결과 가스의 주입구 부분에서는 수성가스전이반응에 의해 흡열 반응이, 출구 부분에서는 발열반응이 일어나고, 이로 인해 입구와 출구의 온도차가 더 커짐을 확인하였다. 따라서 상용화 스택인 수백 kW급 이상의 대형 스택을 모사하기 위해서는 수성가스전이반응을 고려해야할 것으로 생각된다.

**Abstract:** In this paper, commercial CFD program FLUENT v5.3 is used for simulation of MCFC stack. Besides using conservation equations included in FLUENT by default, mass change, mole fraction change and heat added or removed due to electrochemical reactions and water gas shift reaction are considered by adding several equations using user defined function. The stacks calculated are 6 and 25 kW class coflow stack which are composed of 20 and 40 unit cells respectively. Simulation results showed that pressure drop took place in the direction of gas flow, and the pressure drop of cathode side is more larger than that of anode side. And the velocity of cathode gas decreased along with the gas flow direction, but the velocity of anode gas increased because of the mass and volume changes by the chemical reactions in each electrodes. Simulated temperature profile of the stack tended to increase along with the gas flow direction and it showed similar results with the experimental data. Water gas shift reaction was endothermic at the gas inlet side but it was exothermic at the outlet side of electrode respectively. Therefore water gas shift reaction played a role in increasing temperature difference between inlet and outlet side of stack. This results suggests that the simulation of large scale commercial stacks need to consider water gas shift reaction.

**Keywords:** Molten carbonate fuel cell, Stack, Computational fluid dynamics, Numerical analysis

### 1. 서 론

연료전지는 공기와 연료를 이용하여 전기화학적 반응을 일으

켜 이를 통해 전기를 얻는 장치로 에너지 이용 효율이 높고, 소음 및 공해물질 배출이 거의 없다는 점에서 차세대 전력 생산 방법으로 각광받고 있다. 연료전지의 발전 원리는 1839년 영국의 W. Grove에 의해서 밝혀졌으며, 1889년 Ludwig와 Charles Langer에 의해 연료전지(fuel cell)로 명명되었다. 그 후 지속적

<sup>†</sup>E-mail: kslee@kimpo.ac.kr

인 발전을 통해 1960년대 Apollo project, Gemini project 등의 우주계획에서 전력 및 식수의 공급원으로서 연료전지가 실용화되었고, 현재에도 각종 전력원으로서 실용화 연료전지의 개발이 계속되고 있다.

용융탄산염 연료전지는 650°C의 고온에서 운전되기 때문에 비싼 촉매를 사용하지 않고도 전기화학반응을 가속화시킬 수 있고 고온의 폐열을 이용할 수 있는 장점이 있다. 또한 연료로는 수소 외에 일산화탄소 등을 사용할 수 있어 연료의 전처리 공정이 보다 간편하며, 전지 내에서 연료의 개질을 시도할 수도 있어서 천연가스, 나프타, 메탄올, 석탄 가스등과 같이 다변화된 연료를 사용할 수도 있다. 단위전지의 전압도 저온형 연료전지에 비해 높고 폐열을 이용한 bottoming cycle이 가능하기 때문에 발전효율 면에서도 우수하다. 따라서 석탄 가스화 공정과 용융탄산염 연료전지 발전 시스템을 연계시키는 대형의 고효율 복합 발전 시스템의 개발도 활발히 진행되고 있다.<sup>1-3)</sup> 그러나 아직까지 연료전지의 발전단가가 기존의 다른 발전방식에 비해서 너무 비싸기 때문에 경제적으로 부담이 되고, 기술축적이 부족하여 재현성을 보장하거나 대용량의 발전기술에 대한 노후화가 미비한 실정이다. 또한 장시간 운전 시 성능의 저하가 나타나거나, 연료기체내의 불순물 처리 등의 문제점도 가지고 있어서 아직까지 개선해야 할 여지가 많다.

용융탄산염 연료전지 발전설비는 개질기와 연료전지 스택, 직류/교류 변환기로 구성되는데 이중 연료전지 스택은 전기를 발생시키는 부분으로서 전체 발전설비의 효율과 성능을 좌우하게 된다. 스택은 전기발생의 최소단위인 단위전지를 직렬로 연결하여 구성하게 되므로 각 단위전지가 만들어내는 전력의 총합이 스택의 전력 생산량이 된다. 단위전지를 적층하여 스택을 구성할 때에 기체를 스택의 적층방향에 따라 균일하게 배분하게 하는 기술이 매우 중요한데, 이는 기체의 불균일한 배분으로 인해 각 단의 단위전지에 성능차가 생기게 되면 전체적인 스택과 발전설비 모두에 큰 영향을 미치게 때문이다. 또한 발전량을 증가시키기 위해서 전지의 전극면적을 넓히고 적층단수를 늘리는 방법을 이용하게 되는데, 이러한 과정을 통해 연료전지의 대용량화를 이루기 위해서는 기체배분의 불균일성이나 온도분포와 같은 스택의 내부조건을 수치적으로 해석하고 예측하여 설계와 운전에 적용하는 것이 필요하다. 스택을 수치적으로 해석하기 위해서는 반응기체의 유동, 반응기체와 구성요소간의 열전달, 반응기체간의 물질전달, 그리고 전극에서의 전기화학반응 등이 복잡하게 얹혀있는 편미분 방정식을 포함하는 모델을 세우고 수치적으로 해를 구해야 한다.<sup>4)</sup>

본 연구에서는 co-flow형 내부 매니폴드 용융탄산염 연료전지 스택을 수치적으로 해석하여 모사하였다. 유동과 열전달, 물질전달 등이 복잡하게 얹혀져 있는 편미분 방정식을 풀기 위해서 상용 CFD(Computational Fluid Dynamics) 프로그램인 FLUENT v5.3을 사용하였고, 전극반응과 주된 부반응인 수성가스 전이반응(water gas shift reaction)은 사용자 정의함수(user defined function)를 이용하여 별도로 작성한 코드를 적용하였다. 이를 통해서 기체유동과 온도분포, 운전조건에 따른 전력생산량 등의 데이터를 구하였고, 아울러 부반응이 스택의 온도분포에 미치는 영향도 알아보았다.

## 2. 모사방법

### 2.1. 모사 시스템

본 연구에서 모사에 사용한 MCFC 스택은 6 kW급과 25 kW

급의 두 가지이다. 6 kW급 스택은 전극면적 3000 cm<sup>2</sup>의 단위전지를 20단 쌓아 올린 형태이고, 25 kW급 스택은 전극면적 6000 cm<sup>2</sup>의 단위전지를 40단 쌓아올린 형태로, 두 스택 모두 반응가스의 공급방식이 내부 매니폴드형이고 기체 흐름방식은 co-flow이다. 6 kW급 스택은 가스가 스택의 하단부로 공급되어 역 U자형으로 흘러 배출되는 형식이고, 25 kW급 스택은 중앙의 header plate를 통해 주입된 가스가 header plate를 중심으로 위에 쌓여있는 단위전지는 역 U자형, 아래에 놓여있는 단위전지는 U자형으로 흘러가도록 되어 있다. 한편 스택의 상, 하판은 히터를 통해 가열되어 923 K가 유지되도록 한다. Table 1에 6 kW급 스택 및 25 kW급 스택의 전극 면적, 유로 높이, 모사에 사용된 운전 조건 등을 나타내었고, Fig. 1에 스택의 구성도를 보였다.

### 2.2. 지배방정식

용융탄산염 연료전지는 anode 가스로 H<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, cathode 가스로 CO<sub>2</sub>와 공기를 넣어준다. 각각의 기체들에 대해 정상상태에서 다음과 같은 연속 방정식이 적용된다.

$$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i) = S_m \quad (1)$$

여기에서  $\rho$ 는 밀도이며,  $u_i$ 는  $I$  방향의 속도 성분을 뜻한다.

Table 1. Principal analysis conditions

Item	6 kW class stack	25 kW class stack
Cell area	3000 cm <sup>2</sup>	6000 cm <sup>2</sup>
Gas channel height	1.25 mm	1.7 mm
Separator thickness	5 mm or 10 mm	5 mm
Cell(electrode+electrolyte+matrix) thickness	2.2 mm	2.15 mm
Inlet gas composition (mole fraction)	Fuel H <sub>2</sub> :CO <sub>2</sub> :H <sub>2</sub> O = 0.72:0.18:0.10 Oxidant CO <sub>2</sub> :O <sub>2</sub> :N <sub>2</sub> = 0.3:0.15:0.55	
Inlet gas temperature	773 K or 823 K	
Operating pressure	1 atm	
Current density	50, 100, 150 mA/cm <sup>2</sup>	150 mA/cm <sup>2</sup>
Gas utilization	0.4 or 0.6	0.6
Thermal conductivity	k <sub>cell</sub> = 7.07 W/mK k <sub>separator</sub> = 22.9 W/mK k <sub>insulator</sub> = 0.05 W/mK	

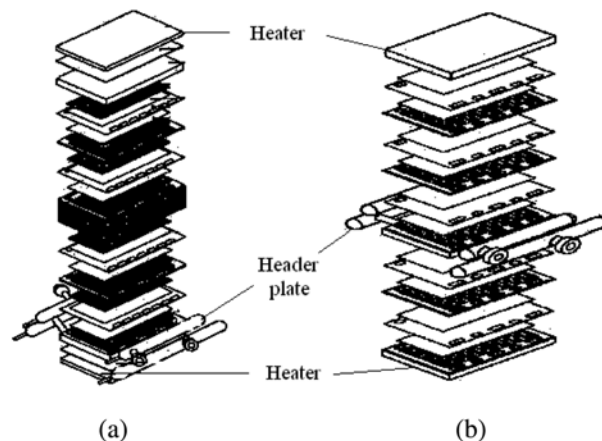


Fig. 1. Schematics of MCFC stack configuration. (a) 6 kW stack, (b) 25 kW stack.

정상상태에서의 운동량보존식은 다음과 같다.

$$\frac{\partial}{\partial x_j}(\rho u_i u_j) = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial Y_{ij}}{\partial x_j} + \rho g_i + F_i \quad (2)$$

여기에서  $p$ 는 압력,  $Y_{ij}$ 는 전단응력,  $g_i$ 는 중력,  $F_i$ 는 외력을 뜻한다.

한편 스택 내로 공급되는 기체 각각에 다음과 같은 정상상태에서의 화학종 이동 방정식이 적용된다.

$$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i m_{i'}) = -\frac{\partial}{\partial x_i} J_{i',i} + R_{i'} \quad (3)$$

여기에서  $i'$ 는  $i$ 번째 화학종을 뜻하고  $m_i$ 는  $i$ 번째 화학종의 질량을 뜻한다. 또한  $R_{i'}$ 은 화학반응에 의한 질량의 생성이나 소멸을 나타낸다.

층류에서 농도구배로 인한 화학종  $i$ 의 질량확산항인  $J_{i'}$ 는 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$J_{i'} = -\rho D_{i',m} \frac{\partial m_{i'}}{\partial x_i} \quad (4)$$

여기에서  $D_{i',m}$ 는 혼합물 내에서 화학종  $i'$ 의 확산계수이다.

MCFC의 작동전압을  $V$ , 평형전위를  $E$ 라고 하고 anode와 cathode의 분극에 의한 저항성분을 각각  $\eta_a$ ,  $\eta_c$ , 내부저항을  $R_{ohm}$ 이라 하면 동작전압  $V$ 는 다음과 같이 나타낼 수 있다.<sup>5)</sup>

$$V = E - i \cdot (\eta_a + \eta_c + R_{ohm}) \quad (5)$$

엔탈피와 자유에너지 변화는 다음 식을 이용한다.<sup>6)</sup>

$$\Delta H^\circ = \Delta H_0^\circ + R \int_{T_0}^T \frac{\Delta C_P^\circ}{R} dT \quad (6)$$

$$\Delta G^\circ = \Delta H_0^\circ - \frac{T}{T_0}(\Delta H_0^\circ - \Delta G_0^\circ) + R \int_{T_0}^T \frac{\Delta C_P^\circ}{R} dT - RT \int_{T_0}^T \frac{\Delta C_P^\circ}{R} \frac{dT}{T} \quad (7)$$

여기에서  $T$ 는 절대온도,  $R$ 은 기체상수,  $C_p$ 는 heat capacity이다. 한편 엔탈피  $h$ 를 포함하는 에너지 방정식은 아래와 같다.

$$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i h) = \frac{\partial}{\partial x_i} k \frac{\partial T}{\partial x_i} - \frac{\partial}{\partial x_i} \sum_j h_j J_{j,i} + \tau_{ik} \frac{\partial u_i}{\partial x_k} + S_h \quad (8)$$

여기서  $k$ 는 분자전도도,  $J_{j,i}$ 는 화학종  $j$ 의 확산 flux,  $S_h$ 는 화학반응열을 포함하는 항이다.

### 2.3. 모사에 이용된 가정

실제 연료전지 스택에서는 여러 가지 변수의 예측하기 힘든 교란(fluctuation)이 발생한다. 예를 들어 전해질에 의한 분리판의 부식 또는 각 단의 wet seal부분의 기체 누출 등은 너무 복잡해서 그대로 모사할 수 없으므로 가정이 필요하다. 본 연구에서 사용된 가정들은 다음과 같다.

- 스택은 정상상태이다.
- 스택의 전류밀도는 전극면에 대해 일정하다.
- 전해질 매트릭스와 전극을 하나의 복합체로 모사했으므로 전극(양극·음극)과 전해질 매트릭스 간의 온도차는 무시한다.
- 전극판 유로의 높이는 일정하다.
- 스택 내 모든 기체의 흐름은 이상기체의 층류 흐름으로 볼 수 있다.

- 전극판 및 셀(전해질+전극), 분리판의 열전도도는 모두 일정하다.
- 스택내의 열전달은 전극판·분리판의 전도, 반응기체와 전극판·분리판 사이의 대류만으로 이루어진다. 복사 열전달은 고려하지 않았다.
- 전해질의 분리판에 대한 영향은 없는 것으로 한다.
- 각 단의 접합부분은 완전히 밀봉되어 유출 및 섞임은 전혀 없다고 가정한다.
- 모든 분리판은 휘어지거나 울퉁불퉁하지 않고 평평하다.

### 2.4. 화학반응과 분극에 관한 식

MCFC에서의 전극반응은 전체적으로 수소와 산소가 반응하여 수증기가 되는 식이며, 이 때의 반응엔탈피에서 전기에너지 생성량을 빼준  $S_h$ 는 다음과 같이 표현된다.

$$S_h = (-\Delta H) \times n_i - i \cdot V \quad (9)$$

이때  $n_i$ 는 반응에 참여하는 가스의 몰유속,  $i$ 는 전류,  $V$ 는 작동전압을 말한다.

반응에 참여하는 수소의 몰유속은 다음과 같이 부하전류와 Faraday 법칙으로부터 계산된다.

$$n_i = \frac{i}{z_i F} \quad (10)$$

여기에서  $z_i$ 는 반응에 참여하는 전자수,  $F$ 는 Faraday 상수이다.

MCFC에서 수성가스전이반응은 주요한 부반응으로 보통의 MCFC 운전조건인 650°C 정도의 온도에서 매우 빨리 반응하여 평형에 도달한다고 알려져 있다.<sup>5)</sup> 본 연구에서는 평형상수 계산을 통한 열역학적 평형관계로부터 반응에 의한 조성 변화 및 온도 변화를 계산하였다. 특정 온도에서의 평형상수값은 다음 식을 통해 계산할 수 있다.

$$-RT \ln K = \sum_i \nu_i G_i^\circ = \Delta G^\circ \quad (11)$$

여기에서  $\nu_i$ 는 양론계수,  $G_i$ 는 Gibbs 자유에너지를 뜻한다.

한편 평형상수는 다음과 같이 조성에 관한 함수로 주어진다.

$$\frac{P_{H_2} P_{CO_2}}{P_{H_2O} P_{CO}} = \frac{y_{H_2} y_{CO_2}}{y_{H_2O} y_{CO}} = K \quad (12)$$

식 (11)과 (12)로부터 수성가스전이반응에 의한 평형조성변화와 온도조성 변화를 구할 수 있다.

분극 현상은 전압 강하의 한 원인이며, 이로 인해 전기에너지 생성량은 줄어들고 발열량이 늘어나게 된다. 평형전위에서 농도 분극에 의한 저항성분은 Yuh와 Selman의 결과를 사용하였다.<sup>7)</sup>

$$\eta_a = 2.27 \times 10^{-9} P_{H_2}^{-0.42} P_{CO_2}^{-0.17} P_{H_2O}^{-1.0} \exp\left(\frac{53500}{RT}\right) \quad (13)$$

$$\eta_c = 7.505 \times 10^{-10} P_{O_2}^{-0.43} P_{CO_2}^{-0.09} \exp\left(\frac{77300}{RT}\right) \quad (14)$$

또한 내부저항식은 Wilemski의 실험 결과를 이용한 다음 식을 사용하였다.<sup>8)</sup>

$$R_{ohm} = 0.5 \times 10^{-4} e^{3016\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{923}\right)} \quad (15)$$

## 2.5. 열역학적 물성치

MCFC는 650°C의 고온에서 작동하므로 점도, 열전도도, 열용량 등의 열역학 변수들의 온도 의존성을 무시할 수 없다. 따라서 가능한 열역학 변수들을 상수가 아닌 온도에 의존하는 함수로 나타내어 계산하는 것이 더 정확한 수치해석결과를 얻는데 필수적이다. 본 연구에서는 heat capacity, thermal conductivity, viscosity, mass diffusion coefficient 등의 물성치를 문헌에서 참조하여 사용하였고,<sup>9-12)</sup> 나머지 물성치는 FLUENT 자체에 내장되어 있는 열역학적 물성치를 사용하였다.

## 2.6. 계산 방법

복잡한 유동과 화학 반응에 관한 식을 계산하여 엄밀해(exact solution)를 구하기는 힘들기 때문에 본 연구에서는 전산유체역학(CFD) 기법을 도입하였다. 수치 해석 기법 중 유한체적법(Finite Volume Method, FVM)을 사용하는 상용 CFD 코드인 FLUENT version 5.3을 사용하여 계산을 수행하였다.<sup>13)</sup> 계산 격자는 pre processor인 GAMBIT v1.1을 사용하여 MAP method와 PAVE method로 정렬격자와 비정렬격자를 혼합하여 생성하였으며, 계산 격자의 수는 6 kW급 스택의 경우 145,652개, 25 kW급 스택은 270,096개였다. 계산영역은 3차원으로 전극, 분리판과 전해질 매트릭스의 전극 반응이 일어나는 영역뿐만 아니라 가스 매니폴드 및 단열재도 포함하였다. 한편 계산 격자수를 줄이기 위하여 실제 스택의 절반만 격자를 구성하는 대칭조건을 사용하였고, 가스 유동이 있는 부분은 고체로 이루어진 부분보다 격자를 좀 더 조밀하게 구성하였다.

본 연구에서의 수치해석상의 수렴조건은 enthalpy normalized residual이  $10^{-6}$  이하, 나머지 물성치에 대한 모든 normalized residual의 합이  $10^{-3}$  이하로 떨어지는 것으로 설정하였다.

완성된 6 kW급 격자를 다음 Fig. 2에 나타내었다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. Voltage and output power

MCFC 스택의 출력은 부하전류밀도와 스택내 전압분포에 의해 결정된다. Fig. 3에 공기극 및 연료극 가스 이용률이 0.4인 상태에서 부하전류밀도에 따른 스택의 전체 전압 및 출력을 동일한 조건에서 운전된 실제 실험 결과와 비교하여 나타내었다.<sup>8)</sup>

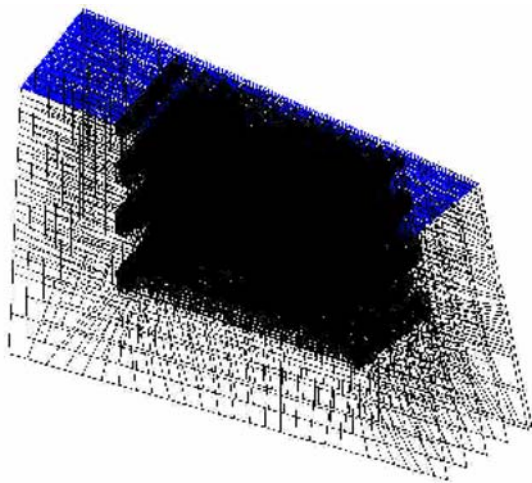


Fig. 2. 6 kW-class stack grid.

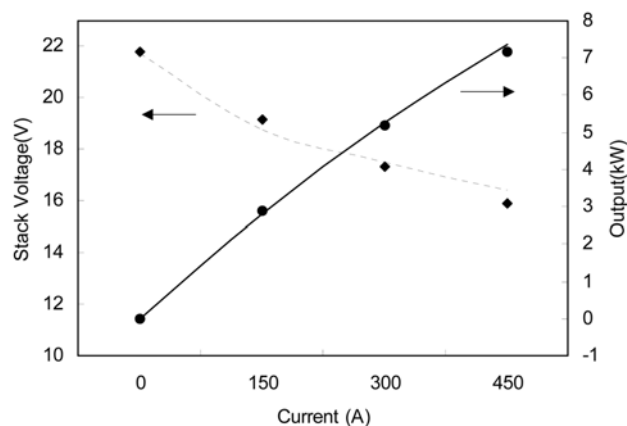


Fig. 3. Voltage and output power of stack compared with experimental data ( $U_f=U_o=0.6$ ,  $i=150$  mA/cm<sup>2</sup>).

모사 결과는 선, 실험 결과는 점으로 나타내었고 모사 결과와 실험 결과가 대체로 일치함을 확인할 수 있다. 전체적으로 가스 이용률을 고정시켰을 때, 부하 전류밀도를 증가시키면 스택의 전위차는 줄어드는 반면 스택의 출력은 늘어나는 경향을 보인다. 모사 결과를 통해 출력을 늘리기 위해서는 부하전류밀도를 증가시켜야 함을 확인할 수 있었지만, 실제로 스택을 운전할 때에는 안정성, 단위전지의 전위차 분포 등을 모두 고려하여야 한다.

### 3.2. Temperature distribution

Fig. 4와 Fig. 5에 각각 6 kW급 스택의 10번째 separator의 온도분포와 스택 전체의 온도분포를 그림으로 나타내었다. 본 연구에서 모사한 스택은 co-flow 형 스택으로 anode 가스와 cathode 가스가 동일한 방향으로 흘러가며 전극 반응을 일으키게 된다. 따라서 가스의 흐름 방향으로 온도가 증가하게 된다. Fig. 4에서 볼 수 있듯이 입구 측 매니폴드로 들어온 가스는 전극면을 지나면서 반응을 일으켜 온도가 계속 증가하지만, 전극면을 지나면서 전극 반응이 일어나지 않는 상대적으로 온도가 낮은 출구 측 매니폴드에 열을 빼앗기며 온도가 약간 하강하게

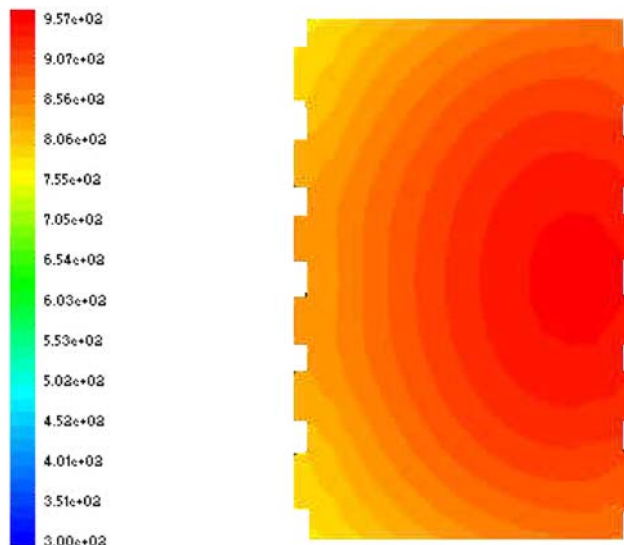


Fig. 4. Planar view of temperature distribution of 10th separator (6 kW,  $U_f=U_o=0.6$ ,  $i=150$  mA/cm<sup>2</sup>).

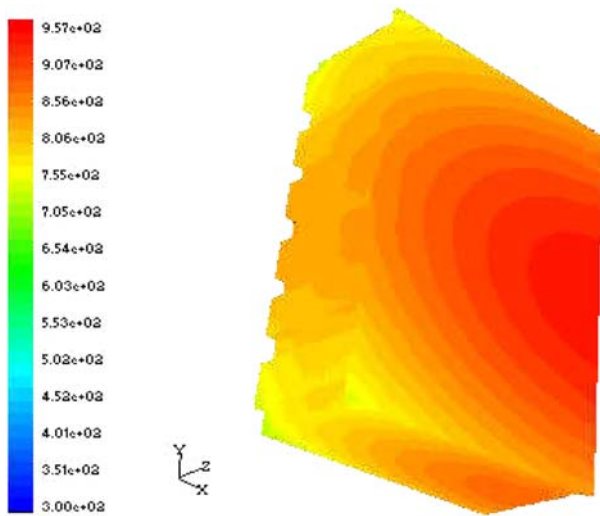


Fig. 5. Planar view of temperature distribution of MCFC stack (6 kW,  $U_F=U_0=0.6$ ,  $i=150 \text{ mA/cm}^2$ ).

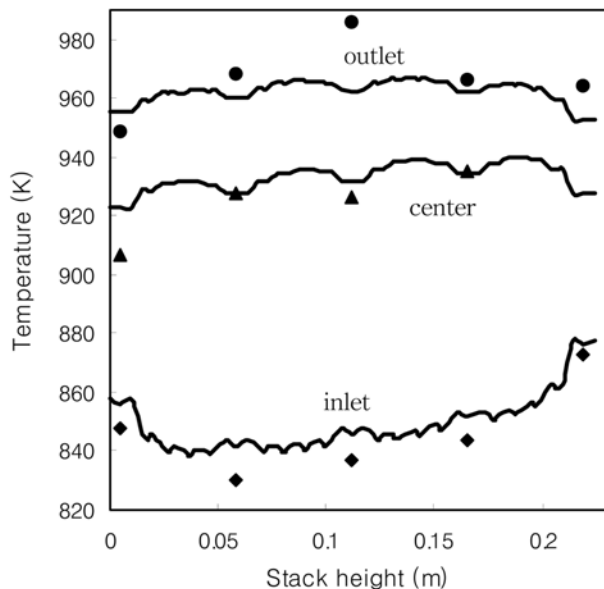


Fig. 6. Temperature distributions compared with experimental data (6 kW,  $U_F=U_0=0.4$ ,  $i=100 \text{ mA/cm}^2$ ).

된다.

모사 결과의 정확도를 검증하기 위해 실제 동일한 운전조건과 동일한 구조의 스택에서 운전한 실험 결과[8]와 비교한 그림을 Fig. 6과 Fig. 7에 나타내었다. Fig. 6은 연료극 및 공기극 가스이용률이 0.4, 전류밀도가  $100 \text{ mA/cm}^2$ 일 경우로 주입 가스의 온도는 823 K이고 Fig. 7은 연료극 및 공기극 가스이용률이 0.6, 전류밀도가  $150 \text{ mA/cm}^2$ 일 경우로 주입 가스의 온도는 773 K인 경우이다. 그림에서 inlet, center, outlet은 각각 가스 흐름방향으로 전극이 시작하는 부분과 중앙, 그리고 전극이 끝나는 부분을 말하며, 온도를 측정된 곳은 1, 6, 11, 16, 21번째 separator 부분이다. 그림을 통해 모사 결과와 실험 결과가 대체로 일치함을 확인할 수 있다.

모사 결과로 알아본 스택 내부의 최대 온도는 주입가스 온도

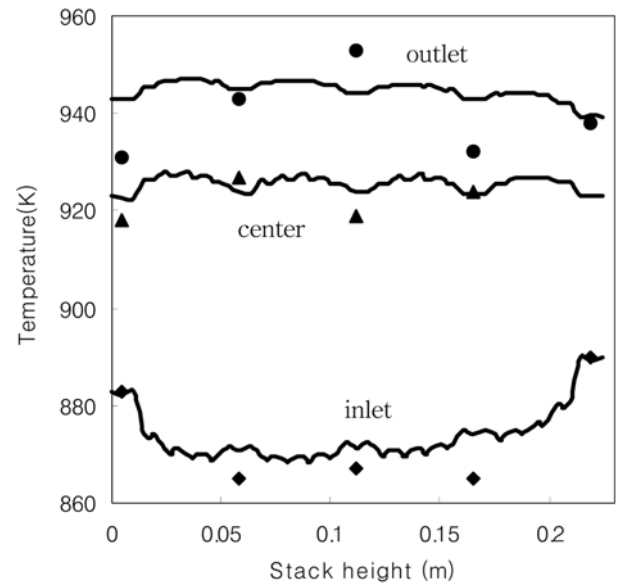


Fig. 7. Temperature distributions compared with experimental data (6 kW,  $U_F=U_0=0.6$ ,  $i=150 \text{ mA/cm}^2$ ).

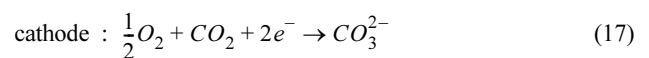
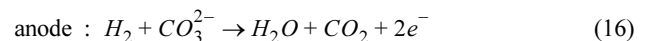
773 K, 연료극 및 공기극 가스이용률을 0.6으로 운전할 경우  $150 \text{ mA/cm}^2$ 로 전류밀도를 주었을 때 974.2 K였고 주입 가스 온도를 823 K로 높이고 연료극 및 공기극 가스이용률을 0.4로 운전하면 전류밀도가 50, 100,  $150 \text{ mA/cm}^2$ 일 경우 각각 945.4 K, 950.2 K, 964.8 K로 나타났다. 이 결과를 통해 가스이용률을 고정시키고 전류밀도를 높이면 스택 내부의 최대 온도가 증가하는 경향을 보임을 확인할 수 있었고, 통상적인 운전조건에서 6 kW급 스택은 최대 온도가 적정 운전온도인  $700^\circ\text{C}$ 를 넘지 않으므로 별다른 냉각 장치 없이도 운전할 수 있는 것으로 나타났다.

### 3.3. Pressure distribution

Fig. 8과 9에 6 kW급 스택 모사 결과로 얻어낸 10번째 anode 채널과 cathode 채널에서의 압력 분포를 나타내었다. 그림에 표시된 압력은 스택 출구 압력을 0으로 기준한 상대압력을 말하며 실제 압력은 여기에 기준압력을 더하여 얻어지게 된다. 전체적으로 inlet manifold 부분에서 outlet manifold 부분으로 진행하면서 압력강하가 이루어지고, cathode 가스의 유량이 anode 가스의 유량보다 매우 크므로 cathode 가스의 압력차가 anode 가스의 압력차보다 매우 크게 나타나고 있다.

### 3.4. Velocity distribution

MCFC는 채널을 흘러가는 가스가 전극면 위를 지날 때 다음과 같은 전극 반응에 의해 가스가 생성되거나 소모되게 된다.



Anode에서는  $\text{H}_2$ 가 소모되는 반면에  $\text{CO}_2$ 와  $\text{H}_2\text{O}$ 가 생성되어 부피가 증가하게 되고 cathode에서는  $\text{CO}_2$ 와  $\text{O}_2$ 가 반응에 참여하여 소모되므로 부피가 감소하게 된다. 각각의 질량변화는 1몰의  $\text{H}_2$  반응 시 anode와 cathode에서 각각 60 g의 생성과 소모가



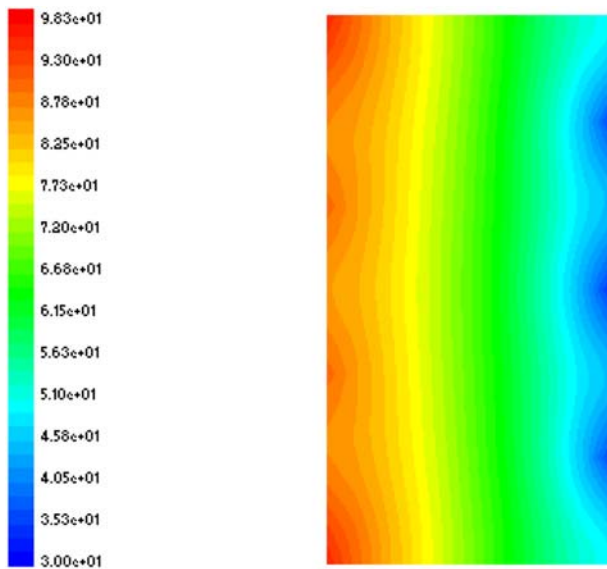


Fig. 8. Planar view of pressure distribution of 10th anode channel (6 kW,  $U_f=U_o=0.6$ ,  $i=150$  mA/cm<sup>2</sup>).

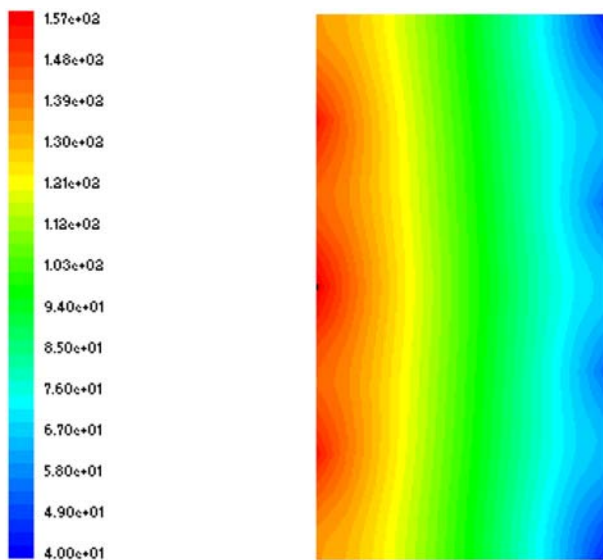


Fig. 9. Planar view of pressure distribution of 10th cathode channel (6 kW,  $U_f=U_o=0.6$ ,  $i=150$  mA/cm<sup>2</sup>).

일어나게 되고 이에 따른 부피변화가 일어나게 된다. 전체적으로 크게 증가하거나 감소하지는 않으나 anode 채널에서는 전극면을 지나면서 속도가 증가하는 경향을 보이고, cathode 채널에서는 속도가 감소하는 경향을 보인다. Fig. 10에 anode와 cathode 채널에서의 속도변화를 가스 이동방향에 따라 나타내었다.

### 3.5. 공기극 가스이용률을 이용한 작동온도 조절

25 kW급 스택의 경우 전극 면적이 6 kW급에 비해 2배 정도 늘어나서 출력이 늘어난 만큼 발열량도 커지게 된다. 실제로 25 kW급 스택 모사 결과 6 kW급 스택과 동일한 운전조건인 주입가스 온도 773 K, 연료극 및 공기극 가스이용률을 0.6으로 운전할 경우 150 mA/cm<sup>2</sup>로 전류밀도를 주었을 때 최대온도는 1080 K 이상으로 계산되어 정상적인 운전이 불가능함을 확인할

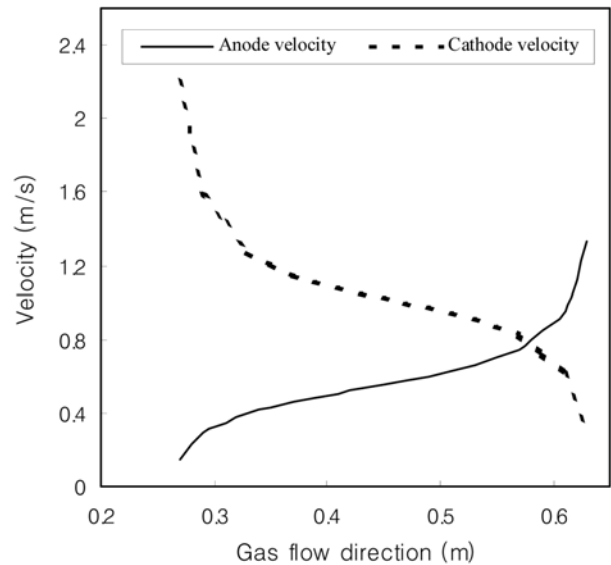


Fig. 10. Velocity distribution of 10th channel (6 kW,  $U_f=U_o=0.6$ ,  $i=150$  mA/cm<sup>2</sup>).

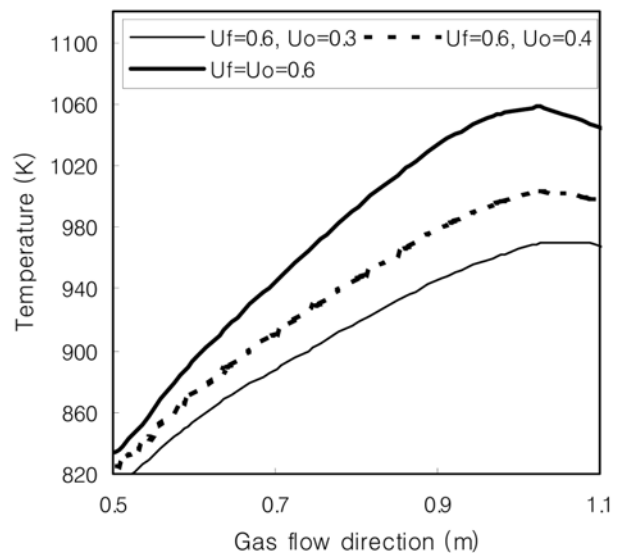


Fig. 11. Temperature of 10th separator of 25 kW stack at different air utilization rate ( $U_f=0.6$ ,  $i=150$  mA/cm<sup>2</sup>).

수 있었다. 이러한 높은 운전 온도는 공기극 가스이용률을 조절함으로써 낮출 수 있음을 Fig. 11에 나타내었다. 가스이용률은 스택 내로 주입되는 가스 중에 반응에 참여하는 가스의 비율 나타낸 것이다. 공기극 가스 이용률을 낮춤으로 인해 많은 양의 비교적 온도가 낮은 가스가 주입되게 되고, 이러한 과량의 가스에 의해 공랭효과를 볼 수 있어서 스택 내부의 온도는 떨어지게 된다. 실제 실험에서 과량의 가스는 recycle 시스템을 통해서 해결할 수 있다. 모사 결과 공기극 가스 이용률을 0.3 정도로 낮추면 스택내부의 최대 온도가 974 K 정도까지 떨어지게 되어 운전이 가능하게 됨을 확인할 수 있다.

### 3.6. Water gas shift reaction

수성가스전이반응이 스택 내부의 온도변화에 미치는 영향을

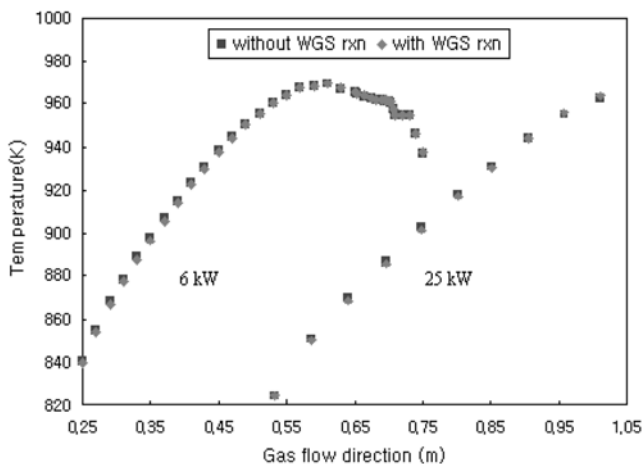


Fig. 12. Temperature of 10th separator of stack. 6kW :  $U_f=U_o=0.6$   $i=150$  mA/cm<sup>2</sup>, 25kW :  $U_f=0.6$ ,  $U_o=0.3$   $i=150$  mA/cm<sup>2</sup>

알아보기 위하여 수성가스전이반응을 포함한 모델과 그렇지 않은 모델을 구성하고, 모든 운전 조건을 같이한 상태에서 모사한 결과를 비교하여 보았다. 얻어낸 결과 중 6 kW급 스택 및 25 kW급 스택의 10번째 분리판의 온도분포를 수성가스전이반응을 포함한 모델과 그렇지 않은 모델을 비교하여 Fig. 12에 나타내었다. 각각의 그림은 가스 이동방향을 x축, 전극 반응이 일어나는 영역의 분리판의 온도를 y축으로 하여 나타낸 것이다. Fig. 12에서 공통적으로 수성가스전이반응을 포함한 모델이 그렇지 않은 모델과 비교하여 가스의 주입구 부분의 온도는 낮고, 가스의 출구 부분의 온도가 높은 것을 확인할 수 있다. 이것은 수성가스전이반응이 구체적으로 가스의 주입구 부분에서는 흡열반응이, 출구 부분에서는 발열반응이 일어나는 것을 의미한다. 이렇게 가스의 주입구 부분과 출구 부분에서 흡열 및 발열반응이 일어나는 것은 초기에 주입구로 들어오는 반응가스 및 생성가스의 부분압 비가 평형상수보다 큰 값을 이루어 흡열 반응인 역반응을 통해 평형상수 값을 유지하려는 경향이 나타나나, 전극반응에 의한 기체조성 변화로 출구부분에서는 반응가스 및 생성가스의 부분압 비가 평형상수 값보다 낮아지게 되어 발열반응인 정반응이 일어나기 때문이다. 이로 인해서 수성가스 전이반응을 포함하는 모델은 그렇지 않은 모델에 비해서 가스 주입구에서는 온도가 낮게, 출구 부분에서는 온도가 높게 나타나서 결국 주입구 부분과 출구 부분의 온도차가 크게 된다. 그 온도차 정도는 6 kW급 스택의 경우 최대 0.8 K 정도, 25 kW급의 경우 1.7 K 정도 차이가 나는 것으로 나타났다. 6 kW급 스택의 경우 큰 차이를 보이고 있지 않으나 25 kW급 스택의 경우 온도차가 커지는 경향을 확인할 수 있다. 따라서 상용화 스택 규모인 수백 kW급이나 MW 단위의 파워플랜트에서 수성가스전이반응에 의한 온도차는 더욱 커질 것이므로, 큰 규모의 스택을 모사할 경우에는 정확한 결과를 얻기 위해서 수성가스반응을 고려해야할 것으로 생각된다.

#### 4. 결 론

상용 CFD 코드인 FLUENT v5.3을 이용하여 용융탄산염 연료전지 스택을 모사하였다. 전극 반응에 의한 anode, cathode 내의 질량 변화 및 반응에 의한 온도 변화뿐만 아니라 가장 주요한 부반응으로 알려진 수성가스전이반응을 사용자 정의함수

로 처리하여 온도분포, 속도분포 및 운전조건에 따른 출력량 등의 결과를 얻어내었다.

· 계산 결과 가스 흐름 방향으로 압력강하가 이루어지고, cathode 가스의 유량이 anode 가스의 유량보다 매우 크므로 cathode 가스의 압력차가 anode 가스의 압력차보다 매우 크게 나타났고, 전극 반응으로 인한 질량 및 부피 변화로 인해 anode 채널에서는 전극면을 지나면서 속도가 증가하는 경향을 보이고, cathode 채널에서는 속도가 감소하는 경향을 보였다.

· 스택 내 온도분포는 가스 흐름방향으로 증가하는 경향을 보였고, 6 kW급 스택의 경우 별도의 냉각 장치 없이도 운전이 가능한 정도의 온도 분포를 보인 반면, 25 kW급 스택의 경우 공기극 및 연료극 가스 이용률을 0.6으로 놓고 운전하면 최대 온도가 1080 K를 넘어서는 것으로 나타났으며, 이는 공기극 가스 이용률을 줄여서 공랭효과를 통해 적정 온도인 700°C 정도로 작동온도를 낮출 수 있음을 확인하였다.

· 스택의 성능은 전체적으로 가스이용률을 고정시켰을 때, 부하 전류밀도를 증가시키면 스택의 전위차는 줄어드는 반면 스택의 출력은 늘어나는 경향을 보였으며, 이러한 계산 결과는 실험 결과와 거의 일치하였다.

· 수성가스전이반응을 포함한 모델과 그렇지 않은 모델을 비교한 결과 가스의 주입구 부분에서는 수성가스전이반응에 의해 흡열 반응이, 출구 부분에서는 발열반응이 일어나고, 이로 인해 수성가스전이반응에 의해 입구와 출구의 온도차가 더 커짐을 확인하였다. 이러한 온도차는 6 kW급 스택보다 25 kW급 스택에서 더 큰 것으로 나타났으며, 따라서 상용화 스택인 수백 kW급 이상의 대형 스택을 모사할 경우 정확한 결과를 얻기 위해 수성가스전이반응의 영향을 고려해야할 것으로 생각된다.

#### 참고문헌

1. C. Berger, "Handbook of Fuel Cell Technology", Prentice-Hall, NJ (1968).
2. D. Linden, "Handbook of Batteries and Fuel Cells", McGraw-Hill, NY (1984).
3. K. Kinoshita, F. R. McLarnon, and E. J. Cairns, "Fuel Cells A Handbook", Lawrence Berkeley Laboratory, CA (1998).
4. H. Hirata and M. Hori, "Gas-flow Uniformity and Cell Performance in a Molten Carbonate Fuel Cell Stack", *J. of Power Sources*, **63**, 115 (1996).
5. L. J. Blomen and M. N. Mugerwa, "Fuel Cell Systems", Plenum Press, NY (1993).
6. J. M. Smith, H. C. Van Ness, and M. M. Abbott, "Introduction to Chemical Engineering Thermodynamics", 4th ed., McGraw-Hill, NY (1996).
7. C. Y. Yuh and J. R. Selman, "The Polarization of Molten Carbonate Fuel Cell Electrodes", *J. of Electrochem. Soc.*, **138**, 3642 (1991).
8. 임희천 외 11명, "100 kW급 용융탄산염 연료전지 시스템 개발(1단계 25 kW급) 최종보고서", 전력연구원 (2000).
9. B. J. McBride, S. Gordon, and M. A. Reno, "Coefficients for Calculating Thermodynamic and Transport Properties of Individual Species", NASA TM-4513 (1993).
10. J. W. Rose and J. R. Cooper, editors, "Technical Data on Fuels", 7th edition, Wiley (1997).
11. R. H. Perry, D. W. Green, "Perry's Chemical Engineers' Handbook", 6th ed., McGraw-Hill, NY (1987).
12. R. B. Bird, W. E. Stewart, and E. N. Lightfoot, "Transport Phenomena", Wiley (1960).
13. Fluent User's Guide, NH03766, Fluent Incorporated (1998).