

최근 분산형 전원용 고체 산화물 연료전지 기술개발 동향

신 동 열

한국에너지기술연구원 수소·연료전지 연구부장

1. 머리말

연료전지의 발전은 연소반응을 이용하는 화력발전과는 달리 물 전기분해의 역반응을 이용한다. 즉 연료가스와 공기 중의 산소를 공급하여 전기와 열을 만들어 내며, 생성물이 물이기 때문에 환경오염이 적고 효율이 매우 높은 발전시스템이다. 연료전지는 1839년 영국의 로버트 그로브에 의해 발명되었으며, 실제로 적용한 것은 1965년 미국의 유인 우주선 제미니 3호의 전원으로 활용한 것이 처음이었다. 이후 미국의 에너지 기술자들은 1970년대부터 본격적으로 이를 민간 전력사업용으로 이용하기 위한 연구개발을 시작하였다.

연료전지는 여러 공학기술이 필요하고, 소요 재료나 공정기술 개발의 어려움 등으로 20년 전까지만 해도 미래의 기술이며 꿈의 기술이라고 생각하였다. 그러나 연료전지 개발의 필요성이 부각된 과거 20년 동안 선진 각국에서는 전략적으로 개발을 유도하여 성공적인 개발이 진행되고 있다.

더욱이 최근 석유, 석탄 등 화석연료의 가격 급등과 고갈, 또한 이를 사용함으로써 생기는 공해 및 지구온난화 주범인 이산화탄소의 감축문제의 해결 방안으로서 지금까지의 연료체계인 탄화수소계 연료로부터 탈피하고 수소를 주 연료로 사용하여 연료전지로 발전하여 전기를 사용하는 방안이 제시되고 있다. 수소에너지의 특징과 이를 이용함으로써 얻을 수 있는 기대효과는 다음과 같이 요약될 수 있다.

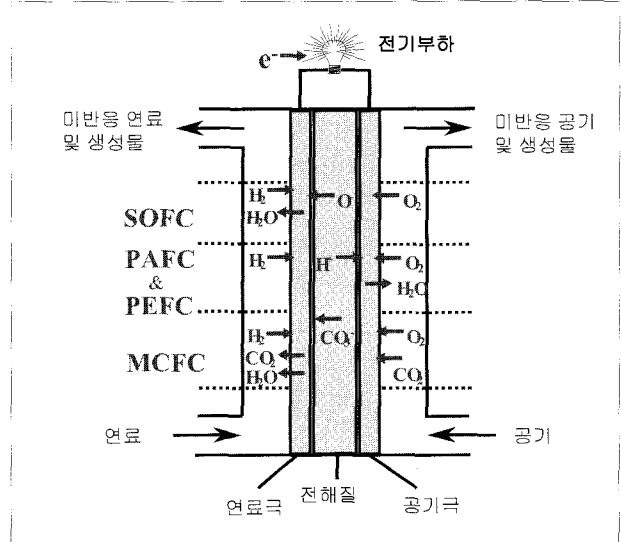
- ① 수소는 연료로 사용할 경우에 연소시 극소량의 NOx를 제외하고는 공해물질이 생성되지 않으므로 환경오염 우려를 최소화할 수 있다. 그러므로 수소에너지의 도입이 빠를수록 대기중 이산화탄소의 농도증가를 경감시킬 수 있다.
- ② 수소는 가스나 액체로서 쉽게 수송할 수 있으며, 고압가스, 액체수소, 금속 수소화물 등의 다양한 형태로 저장이 용이하다.
- ③ 수소는 무한정인 물 또는 유기물질을 원료로 하여 제조할 수 있으며, 사용 후에는 다시 물로 재순환되므로 자원 고갈 우려가 없다. 따라서 수소는 석탄, 석유, 천연가스 등 기존 화석연료의 자원고갈에 대비할 수 있는 적합한 차세대 에너지원(매체)이다.
- ④ 수소는 산업용의 기초 소재나 일반 연료로 사용하며, 연료전지를 이용하여 발전을 할 수 있는 등 현재의 에너지시스템에서 사용되는 거의 모든 분야에 이용될 수 있다.

수소를 사용하는 연료전지발전시스템은 적용분야에 따라 여러가지 형태의 연료전지가 분산 발전용으로 개발되고 있다. 특히 가스터빈과 연계가 가능한 고체 산화물 연료전지는 연료전지 가운데 가장 효율이 높고 중대형에서부터 소형시스템까지 실증시험기가 개발되어져 수년 내에 상용화가 이루어질 것으로 전망되며, 시장 파급효과를 고려할 때 국내 기술개발이 시급히 요구되는 분야이다.

따라서 본고에서는 분산 전원용으로 개발되고 있는 고체산화물 연료전지의 기술과 개발현황을 설명한다.

2. 연료전지 원리 및 특성

연료전지는 화석연료 속의 수소와 공기중 산소의 전기화학 반응에 의해 연료가 갖고 있는 화학 에너지를 전기



〈그림 1〉 연료전지 동작 구조 및 원리

에너지로 연속하여 변환시켜주는 전기화학적인 발전장치 (Electrochemical Generator)로 정의되며, 기본 구조는 그림 1에 표시한 바와 같이 이온(ion)전도성이 좋은 전해질(electrolyte)을 사이에 두고 2개의 다공성 전극을 갖는 형태로 구성되어 있다. 고체 산화물 연료전지의 전기화학 반응을 보면, 연료극에서는 수소가 전자를 내어놓고 전해질을 통해 이동해온 산소이온과 만나 물과 열을 생성시킨다. 연료극에서 생성된 전자는 외부회로를 통해 직류전류를 만들면서 공기극으로 이동하며, 공기극에서 산소와 만나 산소이온이 되고 생성된 이온은 전해질을 통해 연료극으로 이동하게 된다. 200℃ 이하에서 작동하는 저온 연료전지의 경우 수소이온이 공기극 쪽으로 이동하여 공기극에서 물을 생성시키는 반응을 일으키나 기본적인 전극 반응은 동일하다.

연료전지는 사용되는 전해질의 종류에 따라 표 1과 같이 구분되며, 동작온도도 다양하여 200℃ 미만의 온도에서 동작하는 저온형 연료전지와 600℃ 이상의 고온에서 동작하는 고온형 연료전지가 있다. 연료전지 발전시스템

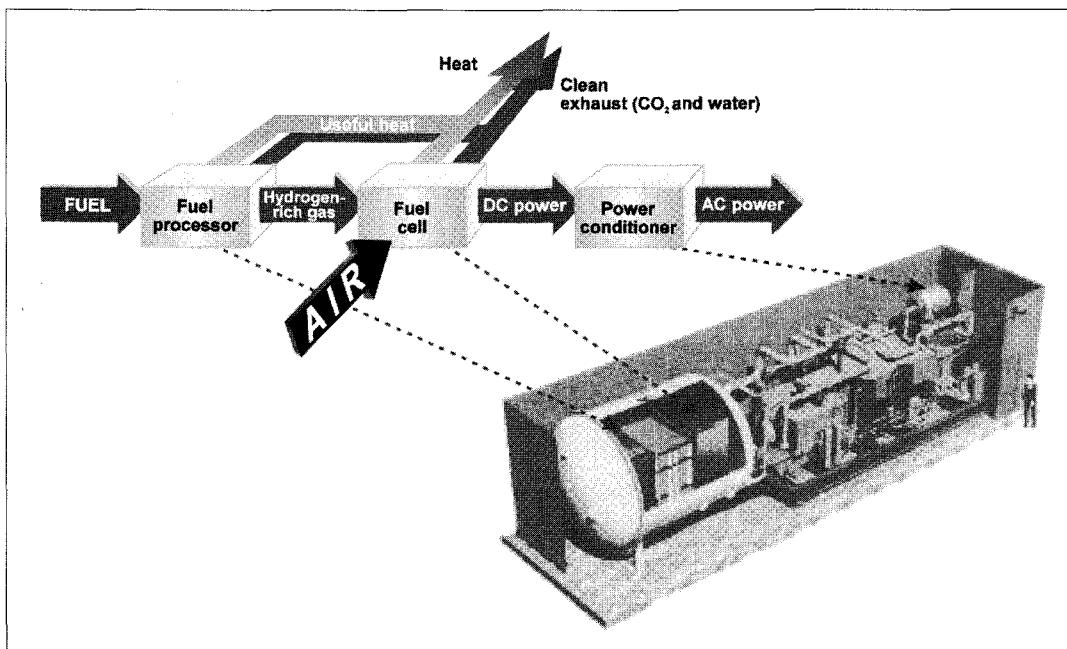
〈표 1〉 연료전지 종류

연료전지 종류	고체고분자(PEFC)	인산형(PAFC)	용융 탄산염형(MCFC)	고체 산화물(SOFC)
반응온도(℃)	60~80	160~210	600~700	600~1000
전 해 질	양이온 교환막	고농도 H ₃ PO ₄ 수용액	Li ₂ CO ₃ /K ₂ CO ₃	ZrO ₂ (Y ₂ O ₃)
이 온 체	H ⁺	H ⁺	CO ³⁻	O ²⁻
전극재료	Pt/C	Pt/C	Ni, NiO	Ni, LaSrMnO ₃

은 그림 2와 같이 기본적으로 연료전지 반응을 일으키는 연료전지 본체 외에 연료 개질 장치, 전력 변환장치 및 종합 제어시스템의 3가지 설비로 발전시스템을 구성해야 한다. 연료 개질 장치는 수소를 포함하는 일반 연료(LPG, LNG, 메탄, 석탄 가스, 메탄올 등)로부터 연료전지가 요구하는 수소 가스로 전환하는 장치이다. 연료전지 본체는 연료 개질 장치에서 들어오는 수소와 공기중의 산소를 전기화학 반응시켜 직류 전기, 물과 부산물인 열을 생산하는 장치이다. 전력 변환장치 및 종합 제어시스템은

연료전지에서 생산된 직류를 교류전력으로 변환시키고 시스템 전체를 제어 관리하는 역할을 수행한다. 이와 같은 기본적인 장치 외에도 발전시스템의 효율을 높이기 위해서는 연료전지 반응에서 생기는 반응열 및 연료 개질시의 폐열 등을 이용하는 장치가 있게 된다.

연료전지 발전 방식은 기존 화력발전과는 달리 연소과정이나 기계적 일이 필요 없는 직접발전 방식이기 때문에 40~60%로 발전효율이 높고, 정격 출력의 25~100%의 넓은 부하범위에서도 거의 일정한 효율을 갖는다. 연료전



〈그림 2〉 연료전지 발전시스템

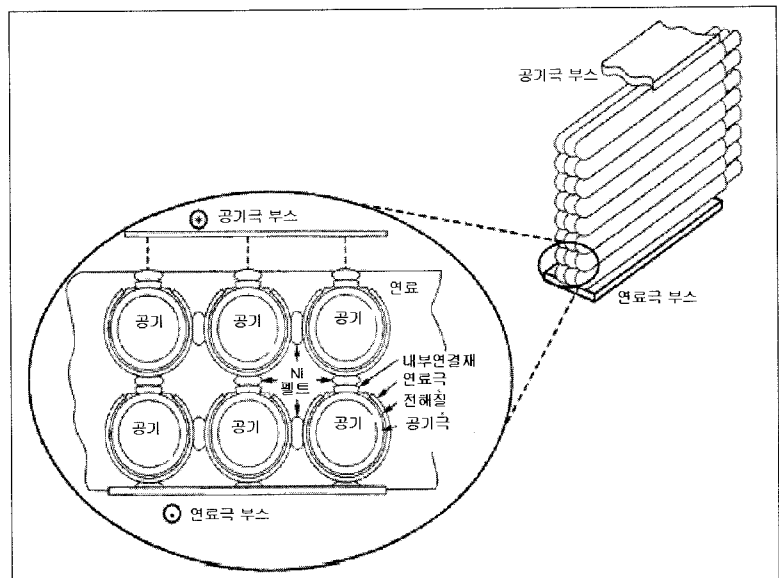
지에서 발생하는 열을 이용할 경우, 전체 에너지 이용 효율은 80% 이상으로 에너지 이용 면에서 뚜렷한 장점을 가질 뿐더러 최근 문제가 되고 있는 CO₂ 배출량도 기존 발전방식에 비해 30% 이상 줄일 수 있다. 또한 연소과정이 없기 때문에 기존 발전소에서 공해요인이 되는 NO_x, SO₂ 및 분진의 배출이 무시할 정도로 적고, 터빈발전과 같은 대형 회전기가 없기 때문에 소음 요인도 아주 적은 장점을 갖고 있다. 또 다른 장점으로서 발전시스템의 모든 구성품이 모듈 형태로서 대량 생산이 가능하고 신속한 조립설치가 가능하여 건설기간이나 건설부지를 절감할 수 있으며, 다양한 연료를 사용할 수 있다.

3. 고체산화물 연료전지 기술

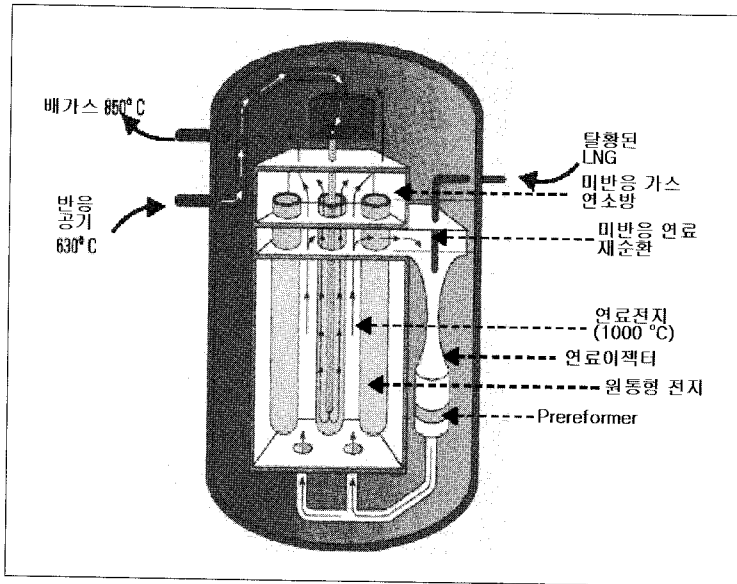
고체산화물 연료전지의 특징은 연료전지 가운데 가장 효율이 높고 공해가 적으며, 외부 연료 개질기가 필요 없고 복합발전이 가능하다는 것이다. 이 연료전지는 기하학적인 모양에 따라 원통형, 평판형, 일체형 등으로 나누어진다. 이 가운데 원통형 연료전지의 기술이 가장 많이 개발되어져 있으며, 그 뒤를 이어 평판형 연구개발이 진행되고 있는 실정이다. 용량별로도 소형시스템에서부터 대형시스템까지 여러 분야에서 기술 개발이 진행되고 있다. 고체산화물 연료전지는 액체 전해질을 사용하는 저온형 연료전지인 인산형 연료전지나 고온형인 용융탄산염연료전지에 존재하는 부식문제, 고가 촉매, 전해질 제어, 외부 개질기 도입 등의 단점은 없으나, 고온에서 작동되기 때문에 구성요소의 대부분이 세라믹 및 내열성 금속으로 이루어져

있어 재료 간의 반응문제 및 신소재 개발, 전극 특성 향상, 스택 제조, 운전시험 평가 등이 주요 연구과제들로 대두되고 있다. 고체산화물 연료전지를 실용화하기 위해서는 수명이 길고 성능이 우수한 대면적의 전해질 및 전극의 제조, 단전지 제조기술, 스택 제조 및 발전시스템 기술 등이 개발되어야 한다.

고체산화물 연료전지의 가장 대표적인 것은 Siemens-Westinghouse가 1980년에 개발한 그림 3의 단전지식 원통형 고체산화물 연료전지이며, 현재 미국과 일본에서는 수백 kW급 이상의 중대형 시스템이 주로 이러한 구조로 개발되고 있다. 고체 산화물 연료전지의 제조순서는 다공성 공기극 지지체의 원통관을 만들고 그 위에 고밀도의 전해질을 수십 μm로 두께로 코팅한다. 이 때 공기극의 일부는 원통관의 길이 방향으로 띠 형태로 남겨 두며, 그 위에 연결재를 입히고, 연료극은 전해질 표면 전체에 코팅한다. 주요 구성소재는 전해질로 Y₂O₃로 안정화된 ZrO₂, 연결재로는 Mg가 도핑된 LaSrCrO₃를 사용한다.



〈그림 3〉 단전지식 원통형 고체 산화물 연료전지 셀 구조



〈그림 4〉 고체 산화물 연료전지 본체

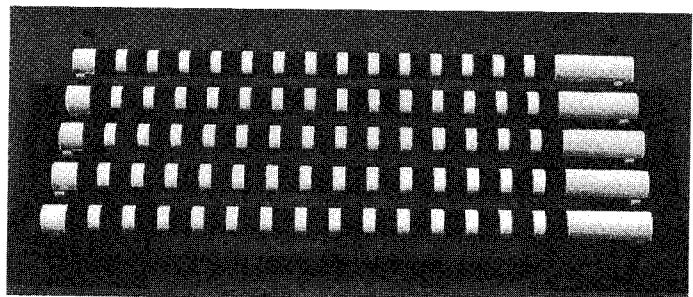
이 구조를 이용하여 높은 전지전압을 얻기 위해서는 연료극과 연결재를 직렬로 연결하며, 높은 전류를 얻기 위해서는 연료극과 연료극을 병렬로 연결한다. 현재 개발된 본체 구조의 배열형식은 병렬 연결된 3개의 관과 직렬 연결된 6개의 관이 한 묶음으로 되어 있다. 각 묶음은 전지 전압을 증가시키고 모듈을 형성시키기 위해 직렬로 연결된다. 이렇게 만들어진 모듈은 더 큰 규모의 연료전지를 만들기 위해 병렬 또는 직렬로 연결되어진다.

그림 4는 고체산화물 연료전지 본체 구조를 나타낸다. 공기는 연료전지의 상부를 통해 공급되며, 보조관을 통해 흘러 들어가 다시 연료전지의 상부를 통해 배출된다. 연료는 스택의 바깥쪽 벽면을 따라 스택 내부 개질장치인 Prereformer를 통해 1차적으로 전 단계 개질 처리를 한 후 전지의 아래에서 위쪽으로 흐르게 된다. 전기화학 반응을 끝낸 미반응 연료는 다공성 세라믹층을 통해 연소방(Combustion

Chamber)으로 이동하고, 여기서 미반응 공기와 반응하여 열을 발생시킨다. 이 열은 전지에 공급되는 공기를 예열하기 위해 사용된다. 전지 내의 온도분포는 연료전지의 전기화학 반응으로부터 발생된 열과 연소방에서의 미반응 연료의 연소에 의해 발생된 열에 의해 유지된다.

이 구조의 가장 큰 특징 중의 하나는 기체 밀봉제가 필요하지 않아 밀봉이 용이하다는 것이다. 밀봉이 필요한 부분은 연료 배출부위이며, 또 하나의 밀봉은 산화제 공급을 위한 보조관과 연소방 사이이다. 또한 열팽창에 대한 저항력이 우수하여 열응력에 의해 발생하는 균열생성을 최소화할 수 있다는 장점이 있다. 그리고 환원성 분위기에서 전지관사이의 접촉이 이루어지므로 전지관 연결이 용이하다. 반면에 전류흐름 경로가 길다는 단점을 갖는다. 또한 EVD(Electrochemical Vapor Deposition)법으로 제조되는 이러한 구조는 전해질과 연결재의 도핑원소 선택을 제한한다.

미쓰비시사에서는 하나의 원통관 상에 단전지가 직렬로 여러 개 배열된 다전지식 원통형 구조를 갖는 고체산화물 연료전지를 개발하였다. 전지는 얇은 띠 형태로 원



〈그림 5〉 다전지식 원통형 고체산화물 연료전지 셀

통관 주위에 연결되며, 연결재가 연료극과 이웃 공기극 사이의 전기적 이음선 및 밀봉제 역할을 한다. 이 구조에 있어서 연료는 원통관의 내부를 통해 이웃전지 사이로 이동하고 공기는 관의 바깥쪽으로 흐른다. 현재 이러한 구조는 일본의 전원개발사와 협력하여 100kW급 개발을 추진하고 있다(그림 5 참조).

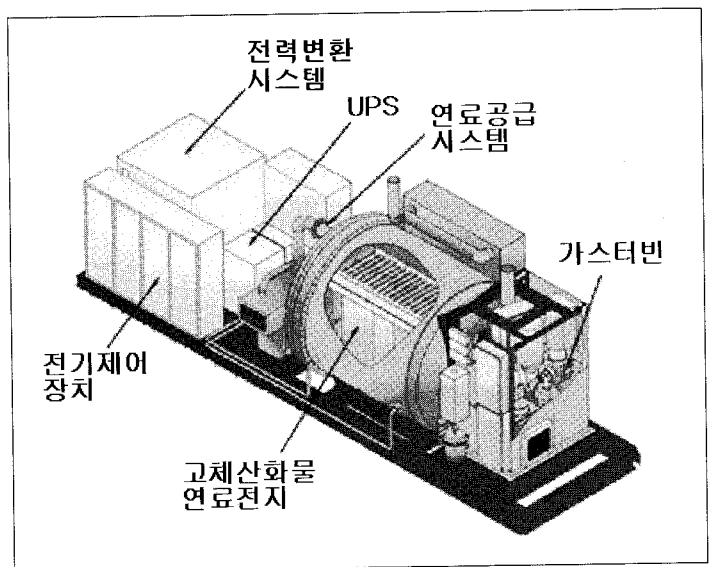
또한 평판형 및 일체형 고체산화물 연료전지가 개발되고 있으며, 저온형 연료전지와 유사하게 판상의 전지를 적층하여 연료전지 본체를 제조한다. 이러한 구조에서 전류는 공기극, 전해질, 연료극, 연결재 순으로 각 구성요소들의 면에 수직 방향으로 흐르므로 원통형 구조에 비해 전류의 흐름경로가 짧아, 높은 전력밀도를 얻는 것이 가능하다. 그러나 고체산화물 연료전지의 주요 구성요소인 전극과 전해질이 세라믹인 관계로 대면적 전지 제조가 쉽지 않아 주로 소형 시스템으로 개발되고 있으며, 기체 밀봉제, 열충격 저항성, 단전지 간의 전기적 접촉저항 등이 개선되어야 한다.

4. 고체산화물 연료전지 적용 분야 및 개발 현황

고체산화물 연료전지는 크게 세 가지의 적용분야로 개발되고 있다. 가장 많이 개발하고 있는 것은 수백 kW급 이상의 중대형 정지형(stationary application) 분산전원 시스템이며, 그 다음은 수십 kW급 이하의 가정용(residential application)과 이동형(portable and transportable applications)이다. 중대형 분산전원의 대표적인 것은 그림 6에 나타난 미국과 독일의 Siemens-Westinghouse사의 220kW급(SOFC 200kW, micro-gas turbine

20kW) 복합발전시스템이며, 일본의 미쓰비시사, 전원개발사, TOTO사, 호주의 Ceramic Fuel Cell사 등도 선두 그룹에 속한다. 주로 수백 kW의 중형에서부터 수 MW 이상의 대형 시스템을 목표로 개발을 진행하고 있다. 이 시스템은 고체산화물 연료전지 단독 시스템 또는 효율을 더욱 증가시키기 위해 가스터빈-증기 터빈을 결합한 복합 발전시스템으로 개발되고 있다.

미국은 DOE 지원 하에 현재 MW급 발전시스템을 개발을 추진하고 있으며, 이 시스템은 기본적으로 220kW급 시스템과 동일한 구조를 갖는다. 3MW 시스템의 경우 고압형 고체산화물 연료전지출력은 1.8MW이고 가스터빈 출력은 1.2MW로 설계되어 졌으며, 시스템의 발전효율은 63%이고, 이 때 고체산화물 연료전지와 가스터빈의 압력비는 6:1로 설계되었다. 시스템의 규모가 작을 경우 압력비를 3:1로 낮추어 제작한다. 고체 산화물 연료전지는 3개의 모듈로 구성되어 있으며, 모듈당 전지수는 2,496개



〈그림 6〉 220kW급 고체산화물 연료전지-가스터빈 복합발전 시스템

이고 전지 지경 및 길이는 각각 2.2cm, 150cm이며, 전지 당 출력은 6기압에서 250W이다. 일본의 전원개발, 미쓰비시 중공업, TOTO, 니폰스틸 등에서도 수십 kW급 및 100kW급의 개발을 추진하고 있으며, 미국 기술의 도입 및 자체 기술 개발을 병행하고 있다.

가정용 고체산화물 연료전지 기술은 스위스 Sulzer-Hexis사, 캐나다의 Fuel Cell Technologies사 및 Global Thermoelectric사, 미국의 Acumentrics사 등이 개발을 추진하고 있으며, 수 kW급 평판형 또는 원통형 소형 열병합발전시스템을 개발하여 수년 내 상용화를 목표로 실증 시험 운전을 추진하고 있다. 휴대용 및 차량용 보조 전원으로도 10kW급 이하의 고체산화물 연료전지 기술이 개발되어지고 있다. 전지의 작동 온도가 높음에도 불구하고 다양한 연료를 직접 사용할 수 있다는 장점으로 인해 기술개발이 진행되고 있으나, 기동 시간 및 열사이클 저항성 개선, 연료처리 시스템 등 많은 기술적인 문제들이 해결되어야 한다.

고체산화물 연료전지는 다른 연료전지에서 발생하는 여러 가지 운전상의 문제점을 최소화시킬 수 있는 발전시스템이다. 또한 고체산화물 연료전지 발전시스템의 실용화 규모와 석탄가스화 시스템과의 연계기술 개발 등에 의존하여 기존 화력발전소, 원자력발전소 등의 대체가능성도 기대되고 있다. 현재의 기술개발 속도로 보아 2005년 이내에는 MW급 고체산화물 연료전지 발전시스템이 실용화될 것으로 판단되며, 미국 Siemens-Westinghouse사는 전력회사, 가스회사, 에너지관련 회사 등을 중심으로 연간 수백 MW 이상의 고체산화물 연료전지 발전시스템의 생산을 목표로 1.2억불을 투입하여 2003년을 목표로 공장건설을 진행하고 있다.

미국은 Siemens-Westinghouse사의 성공적인 개발에 힘입어 2002년까지 2억 달러를 투자하여 고체산화물 연료전지/가스터빈 복합발전시스템인 가압형 MW 발전시

스템을 개발하는 프로그램을 1997년부터 진행하고 있으며, DOE의 VISION 21 프로그램 및 SECA 프로그램 등을 통해 국가적인 차원에서 기술개발을 추진하고 있다.

VISION 21 프로그램은 2015년도 목표인 장기 개발 계획으로서, 아직까지는 풍부한 석탄을 가스화 해서 고체산화물연료전지의 연료로 사용하여 발전을 하고, 발전시에 발생하는 열을 이용하여 가스터빈을 돌려서 발전을 하는 혼합 발전기술로서 총효율이 75%나 되는 고효율 청정 발전기술이다.

SECA 프로그램은 2010년을 목표로 고체산화물 연료전지의 가격을 kW당 400달러로 낮추려는 연구계획이다. 그밖에 DOD, NASA, NIST 등에서도 각자의 목적에 따라서 일정액의 연구개발비를 투자하여 고체산화물 연료전지 기술 개발을 추진하고 있는 상황이다.

일본의 고체산화물 연료전지 연구는 NEDO의 지원 하에 뉴선사인 프로그램으로 진행되고 있다. 지금까지 주로 평판형 고체산화물 연료전지를 많이 연구개발 하여 왔으나, 기술적인 문제점과 개발 속도 등을 감안하여 원통형 구조도 함께 개발하고 있는 상황이다. 일본은 미국 기술의 도입과 자체기술의 개발을 병행으로 추진하고 있다. 미국의 기술 도입은 주로 25kW급 원통형 발전시스템의 도입과 실증시험, 원통관 및 구성 소재 개발과 제조공정 개선 연구를 추진하고 있다. 자체기술 개발로는 다전지식 원통형 연료전지를 개발하고 있으며, 현재 미쓰비시 중공업이 10kW를 성공적으로 개발하였다. 현재 이 시스템은 제조단가가 비싸기 때문에 공정개선이 큰 문제점으로 대두되고 있다.

또한 원통형 구조 개발의 일환으로 연료극 지지체형 스택과 습식법에 의한 공기극 지지체형 스택 개발을 진행하고 있다. 평판형 연료전지의 연구는 국립연구소, 전력회사, 가스회사, 세라믹 회사 등 많은 기업들이 추진하고 있는 상황이다. 또한 미쓰비시사는 25kW의 평판형 연료전

지 개발을 완료하였으며, 대용량 발전시스템 개발을 계속해서 진행하고 있다.

유럽은 독일을 중심으로 영국, 네덜란드, 덴마크, 스위스 등에서 연구개발이 진행되고 있다. 독일은 현재 10kW, 20kW의 평판형 고체산화물 연료전지를 제작하여 운전하였으며, 2000년 중반까지는 100kW의 발전시스템이 개발될 것으로 보고 있다. 이와 아울러 독일은 연료극 지지체식 평판형구조 개발을 진행하고 있다.

연료극 지지체구조는 대면적 고강도를 갖는 전해질판 제조를 가능케 하고 고체산화물 연료전지의 작동온도를 감소시킬 수 있다는 이점을 갖는다. 또한 유럽연합의 프로그램으로 고체산화물 연료전지 연구개발이 진행되고 있으며, 각 구성요소의 개발과 신형 구조개발 등이 여러 나라에서 추진되고 있다. 유럽의 고체산화물 연료전지 연구 개발은 매우 활성화되어 있으며, 고체산화물 연료전지 관련 유럽 국제학술회의를 독립적으로 개최할 정도이다.

최근에 호주에서는 정부, 가스회사, 에너지회사, 전력회사 등을 중심으로 고체산화물 연료전지 전문회사인 CFCL을 설립하였으며, 이 회사는 3~5kW, 25kW의 스택을 개발하였다고 보고하였고, 100kW급 개발, 용량증가 및 실용화 기술개발 연구를 추진하고 있다.

국내에서의 고체산화물 연료전지 기술은 1994~1997년에 대체에너지 기술개발 프로그램으로 진행된 바 있으며, 2002년부터는 산자부의 차세대 기술개발 사업으로 고체산화물연료전지와 가스터빈을 합친 혼합형 발전기술을 개발 중에 있으며, 산자부의 대체에너지 개발사업으로 주택용 소형 고체산화물연료전지의 개발도 금년부터 시작할 예정이다. 이외에도 연구소, 대학 등을 중심으로 기초 기술, 요소 기술, 단전지 기술, 스택 기술개발 연구가 진행되고 있고, 현재 국내기술은 100W 스택 개발과 kW급 스택 기반 기술개발을 완료한 수준이다.

5. 맺음말

최근 전 세계가 당면하고 있는 석유 고갈에 따른 고유가와 자원의 무기화 그리고 온실가스 감축 등 여러 가지 에너지 문제들의 해결책으로 선진국에서는 연료전지 발전기술을 실용화하여 사용하려는 노력에 국력을 집중하고 있다.

연료전지발전기술은 연료의 절약효과(고효율 발전), 환경부하 및 온실가스 저감 효과, 연료의 다양화 효과, 국가 경쟁력 및 신규산업 창출효과가 있는 차세대 신에너지 기술이다. 적용분야에 따라 여러 가지 형태의 연료전지가 분산 발전용으로 개발되고 있다. 특히 가스터빈과 연계가 가능한 고체 산화물 연료전지는 연료전지 가운데 가장 효율이 높고 중대형에서부터 소형시스템까지 실증시험기가 개발되어져 수년 내에 상용화가 이루어질 것으로 전망된다. 따라서 시장 과급효과를 고려할 때 국내 기술개발이 시급히 요구되는 분야이다.

우리 나라 정부도 연료전지 기술의 중요성을 인식하여 10여 년 전부터 국가 선도기술 및 대체에너지 개발사업에 연료전지 기술을 포함시켜 개발에 노력하여 왔다. 더욱이 최근 전 세계적으로 연료전지 기술의 중요성이 강조되면서 우리 정부도 연료전지 기술이 앞으로 국가 경쟁력을 향상시킬 수 있는 성장 주력기술로 판단하고 있다.

그러나 분산형 발전소에 적합한 고체산화물연료전지 기술은 아직 초보적인 수준에 불과하다. 고체 산화물 연료전지 발전시스템이 대형 복합기술이며, 공공성이 있는 사회 기간산업이며, 신기술이기 때문에 산업계의 초기 참여가 어려운 면이 있다. 따라서 성공적인 개발을 위해서는 국가주도의 장기 계획 하에 종합적이고 체계적인 추진 체계를 구축하여 정부와 연구소, 학계 및 산업계가 모두 힘을 합쳐 노력해야 할 것이다. ■