

Fabrication of Co-Planar Type Single Chamber SOFC with Patterned Electrodes

Sung-Jin Ahn, Yong-Bum Kim, Jooho Moon,[†] Jong-Ho Lee,* and Joosun Kim*

Department of Materials Science and Engineering, Yonsei University, Seoul 120-749, Korea

*Nano-Materials Research Center, KIST, Seoul 136-791, Korea

(Received August 10, 2006; Accepted September 30, 2006)

패턴된 전극을 가진 표면 전도형 단실형 고체산화물 연료전지의 제조

안성진 · 김용범 · 문주호[†] · 이종호* · 김주선*

연세대학교 세라믹공학과

*한국과학기술연구원 재료연구부

(2006년 8월 10일 접수; 2006년 9월 30일 승인)

ABSTRACT

Co-planar type single chamber solid oxide fuel cell with patterned electrode on a surface of electrolyte has been fabricated by robo-dispensing method and microfluidic lithography. The cells were composed of NiO-GDC-Pd or NiO-SDC cermet anode, $(La_{0.7}Sr_{0.3})_{0.95}MnO_3$ cathode, and yttria stabilized zirconia electrolyte. The cell performance at 900°C was investigated as a function of electrode geometries, such as anode-to-cathode distance, numbers of electrode pairs. Relationship between OCV and I-V characteristics at the optimized operation condition was also studied by DC source meter under the mixed gas condition of methane, air, and nitrogen. An increase of anode-facing-cathode area leads to lower OCV due to intermixing between product gases of anode and cathode, which in turn decreases the oxygen partial pressure difference.

Key words : Single chamber SOFC, Interdigitated electrode, Robo-dispensing, Microfluidic lithography

1. 서 론

연료전지는 수소와 산소가 가지고 있는 화학적 에너지를 부가적인 과정을 거치지 않고 직접 전기 에너지로 전환시켜주는 에너지 변환 장치로 수소와 산소를 양극과 음극에 지속적으로 공급하여 연속적으로 에너지를 생산해 내는 시스템이며, 내연기관과는 달리 60% 이상의 높은 효율을 얻을 수 있고, 환경 오염 및 폐기물 발생이 없는 환경 친화적인 차세대 에너지원이다. 이 가운데 고체산화물 연료전지(SOFC)는 비교적 높은 온도영역(600-1000°C)에서 작동할 수 있는 고온형 연료전지로서 다른 연료전지들과는 달리 고순도의 수소가 아닌 메탄올, 가솔린과 같은 다양한 종류의 탄화 수소계 연료 물질들을 부가적인 처리없이 사용할 수 있고 열병합 발전이 가능한 에너지 변환장치이다.^{1,2)} 그러나 고온의 작동 환경으로 인해서 세라믹 소재가 주요 구성 재료로 사용되고 있으며 각 요소 부분에 엄격한 열적, 기계적, 화학적, 전기적 특성이 요구되고 있다. 따라서 셀의 제조에 있어서 많은 비용이 요구

되고 대형화 및 성형이 용이하지 않으며, 특히 고온에서 연료와 산소를 격리하는 밀봉이 어렵고 전지의 수명 단축 및 신뢰성 저하 등의 문제가 따른다.

이러한 문제점을 극복하기 위한 방법 가운데 하나로 Gool 등은 단실형 고체산화물 연료전지라 불리는 연료와 공기의 혼합 가스를 공급하여 연료극과 공기극의 밀봉이 필요하지 않은 형태의 디자인을 제안하였다.³⁾ 최근에는 Hibino 등이 탄화수소계 연료와 공기를 혼합·공급하여 단실형 고체산화물 연료전지의 저온 작동화와 더불어 주목할만한 전기화학적 성능을 보고하였다.⁴⁾ 단실형 고체산화물 연료전지는 고온에서 공기극, 연료극 간의 개스 실링이 불필요할 뿐만 아니라, 열적, 기계적 저항력도 상당히 우수하며 무엇보다 전체 시스템의 설계를 매우 단순화 할 수 있는 장점이 있다. 그러나 연료와 산화제의 혼합가스를 이용하는 특성으로 인해서 각 전극의 가스에 대한 선택적인 촉매 특성에 크게 의존하며 동일한 환경 하에서 작동하는 일반적인 고체산화물 연료전지에 비해서 성능이 떨어지고 연료 사용률이 매우 낮은 단점을 동시에 지니고 있다.

단실형 고체산화물 연료전지는 크게 두 가지 형태로 나눌 수 있다. 첫 번째는 일반적인 고체산화물 연료전지와 동일하게 전해질 양면에 음극과 양극을 형성한 형태로 단

[†]Corresponding author : Jooho Moon

E-mail : jmoon@yonsei.ac.kr

Tel : +82-+82-2-2123-2855 Fax : +82-2-365-5882

순히 연료와 공기의 혼합 가스에 노출되는 형태이고, 두 번째는 전해질의 같은 면에 양극과 음극을 동시에 형성하여 전해질의 두께를 줄이는 대신에 전극간의 간격을 좁혀 오옴 저항(ohmic resistance)을 줄일 수 있는, 표면 전도형 단일형 고체산화물 연료전지(Coplanar Single Chamber SOFC)이다. 최근에, 첫 번째 형태의 단일형 고체산화물 연료전지에 관한 연구 결과가 종종 보고되고 있는데 반해서,⁵⁻⁷⁾ 두 번째 형태의 단일형 고체산화물 연료전지에 대한 연구 결과는 상대적으로 매우 적은 것이 사실이며, 일부 보고된 사례들도 단 한 쌍의 양극과 음극이 공존하는 매우 단순한 형태이거나,^{8,9)} 실제 작동 환경의 가스 반응이 전혀 고려되지 않은 단순한 시뮬레이션 및 전기적 측정 결과들 뿐이었다.^{10,11)}

본 연구에서는 단일형 고체산화물 연료전지의 상대적으로 낮은 출력 특성을 개선하고 집적도를 향상시키기 위해 전극 영역을 최대화한 복잡 형상의 전극 디자인을 도입하고자 하였으며, 이를 위해 복잡한 형상의 전극을 패턴링한 표면 전도형 단일형 고체산화물 연료전지의 개발과 패턴링 된 전극의 형태가 연료전지 성능에 미치는 영향을 연구하였다. 이를 위해서 로보 디스펜싱 기법(robot dispensing)과 미세유체 리소그래피법(microfluidic lithography)이라는 두 가지 성형법을 통해서 단전지를 제작하였다. 완성된 단전지는 패턴링 된 전극의 형상을 음극과 양극 한 쌍이 공존하는 형태부터, 동시에 여러 쌍 존재하는 형태로 점차 복잡화하면서 전극 구조와 셀 성능의 상관 관계를 분석하였다.

2. 실험 방법

표면 전도형 단일형 고체산화물 연료전지의 제작을 위해 전해질로 YSZ(TZ8Y, Tosoh Corp.)가 사용되었다. 전해질의 제작을 위해서 YSZ 분말은 일축 가압법으로 100 MPa의 압력을 가해 디스크 형태의 성형체로 만든 후 1500°C 상압 조건에서 10시간 동안 소결하였다. 완성된 전해질 디스크는 직경이 18.5 mm, 두께가 1 mm이고, 양극과 음극을 패턴링 하기 위한 기판으로 사용되었다. 전극 패턴에 사용된 두 공정의 상세한 설명은 본 연구진의 다른 연구 결과에 보다 더 자세히 보고되어 있다.^{12,13)}

2.1. 로보 디스펜싱 기법

음극과 양극 물질로 각각 NiO(Sumitomo Chemical Co.), GDC(Nextech Corp.), Pd(Aldrich Chem. Co.)의 서멧(cermet)과 LSM((La_{0.7}Sr_{0.3})_{0.95}MnO₃, Seimi Corp.)을 사용하였다. 음극은 NiO, GDC, Pd를 60:37:3의 질량비로 칭량한 후 α -terpineol에 ethyl cellulose와 분산제를 첨가하여 14.8 vol%의 함량으로 250 rpm, 12시간 동안 planetary milling(Fritsch, Plenerisette 5)을 통하여 페이스트로 제작하였다. 양극 역

시 동일한 방법으로 LSM 분말을 20 vol%의 함량으로 페이스트를 제작하였다.

각각의 전극 페이스트는 컴퓨터에 의해 그 움직임이 제어되는 로보 디스펜싱 머신의 주사기 튜브 내에 탑재되고 직경이 0.21 mm인 원형의 노즐을 통해서 1.5 torr의 압력으로 1.22 mm/s의 속도로 움직이고 있는 기판에 선택적 토출되었다. 원형의 YSZ 전해질 기판 위에 토출된 음극과 양극의 선형 패턴은 그 길이가 8 mm이고, 선폭이 각각 0.5 mm, 0.45 mm였으며, 순차적으로 음극을 1350°C에서 2시간, 양극을 1200°C에서 2시간 동안 소결하였다.

2.2. 미세 유체 리소그래피법

슬러리 기반의 공정인 미세 유체 리소그래피법은 분산 안정성이 최종 미세 구조체에 미치는 영향이 매우 크기 때문에 에탄올 용매에서 복합 분말 형태로의 분산에 어려움이 있는 GDC와 Pd를 배제하고 보다 분산이 용이한 YSZ 분말을 사용하였다. 음극 조성은 NiO와 YSZ를 70:30의 무게비로 혼합하여 에탄올에 20 vol%의 함량으로 분산하고 30시간 동안 불밀링하여 준비하였다. 양극의 경우 역시 같은 방법으로 70:30의 무게비로 칭량한 LSM과 YSZ 복합 분말을 20 vol%의 함량으로 에탄올에 분산하여 전극 슬러리를 준비하였다. 미세 유체 리소그래피법을 위한 poly(dimethyl siloxane) (PDMS) 몰드를 제작하기 위한 원형은 SU-8(Microchem Corp.) 포토리지스트(photoresist)를 사용하여 일반적인 광학전사법을 통해서 제작하였다. 마스터 위에 10:1의 질량비로 혼합한 PDMS 전구체(Sylgard 184, Dow Corning Co.)를 붓고 85°C에서 1시간 동안 열처리하여 경화시켜 몰드를 완성하였다. 완성된 PDMS 몰드는 5×5 mm²의 영역 안에 전극 간 간격이 50 μ m인 14쌍의 복잡형상의 양극과 음극의 미세 유로가 패턴링 되어 있다. 음극과 양극 슬러리는 진공 챔버(vacuum chamber)에서 10 torr까지 감압한 후 상압으로 전환하며 발생하는 압력차를 이용하여 PDMS 몰드와 YSZ 기판을 접착하여 생긴 미세 유로 내로 강제 침투되었으며, 상온에서 건조된 후 PDMS 몰드를 제거하고 음극은 1350°C 1시간, 양극은 1150°C 1시간 동안 소결하여 단전지를 완성하였다.

2.3. 단전지 측정

로보 디스펜싱법과 미세 유체 리소그래피법을 통하여 완성된 단전지들은 전류 집전을 위해 Au 전선 및 페이스트(ESL Electro-Science, King of Prussia, PA, USA)를 사용해 양극과 음극의 끝단에 점 접촉을 하고 800°C에서 1시간 동안 열처리를 하였다. 완성된 단전지의 음극과 양극은 광학현미경(Leica DMLM), 주사전자현미경(ESEM, FEIXL-30 FEG, Philips, Netherlands)을 사용하여 관찰하였고, I-V 특성은 900°C에서 3%의 수증기를 포함한 질소, 메탄, 공기를 5:3:4의 비율로 전체 유량을 240 sccm으로 하

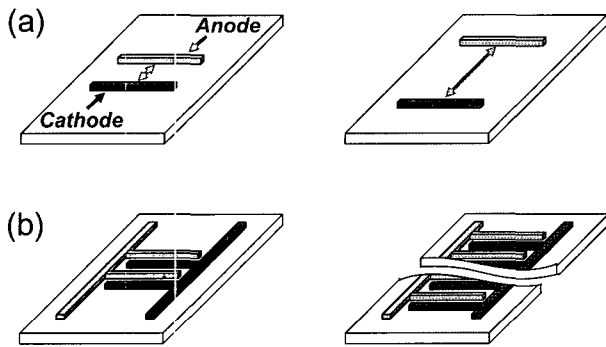


Fig. 1. Schematic illustrations of two types of SC-SOFC electrode geometry with linearly patterned electrodes on the same electrolyte surface: (a) the cell with a single electrode pair varying distance between anode and cathode and (b) the cell with increasing the number of electrode pairs.

여 단전지에 공급하면서 DC source meter(Keithley 2425)를 통해서 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 로보 디스펜싱법을 사용해서 제작한 표면 전도형 단실형 고체산화물 연료전지의 대략적인 이미지를 보여준다. 일반적으로 단실형 고체산화물 연료전지의 음극은 탄화수소계 연료에 대한 높은 전기화학적 촉매 특성이 요구된다. 본 연구에서 사용한 NiO-GDC-Pd 서멧 음극 역시 기준에 보고된 메탄에 대한 최적의 음극에 대한 연구 결과에 바탕을 두고 그 조성과 정량비를 결정하였다.¹⁴⁾

로보 디스펜싱법에 의해 완성된 단전지의 종류는 두 가지로, 음극과 양극이 한 쌍만 있고 양극-음극 사이 간격을 255 μm , 270 μm , 443 μm , 783 μm 으로 변화시킨 단전지와(Fig. 1(a)), 음극-양극 간격을 $\sim 250 \mu\text{m}$ 로 일정하게 유지하면서 음극과 양극의 가지 수가 각각 2쌍, 4쌍, 8쌍인 단전지(Fig. 1 (b))를 준비하였다. 모든 단전지에 대하여

음극과 양극의 두께는 각각 19.1 μm , 8.3 μm 로 일정하게 유지되었다.

로보 디스펜싱법에 있어서 균일한 전극 구조와 다양한 성분 분말들이 안정적이고 균일하게 분포된 미세 구조를 얻기 위해서는 페이스트의 조성 및 유변학적 특성과 토출 압력, 노즐의 크기, 기판의 거칠기 및 기판의 이동 속도 등 여러 공정 변수들이 최적화 되어야 한다. Fig. 2는 소결된 음극과 양극 단면의 SEM 사진으로 두 전극이 모두 다양한 입계 간의 연결이 잘 이루어져있고, 연료전지 전극 반응에 필요한 충분한 기공율을 가지고 있는 미세 구조를 나타내고 있음을 알 수 있다. SEM 사진을 바탕으로 이미지 분석법을 통해서 계산된 음극과 양극의 기공율은 각각 48.4%, 39.6%였다.

본 연구에서는 우선 표면 전도형 단실형 고체산화물 연료전지의 최적의 작동 환경을 찾기 위해서 Fig. 1(a) 처럼 한 쌍의 음극과 양극을 가진 단순한 형태의 단전지를 사용해 900°C에서 100 sccm의 일정량의 질소를 흘리면서, 메탄과 공기 유량의 합을 140 sccm으로 일정하게 유지하고 메탄/산소의 부피비(R_{mix})를 변화시켜가며 이에 따른 OCV와 출력 특성을 조사하였다. 우선적으로 질소 가스를 흘려주지 않을 경우 OCV가 발현되지 않는 현상이 관찰되었고, Fig. 3에서 보는 것처럼 메탄의 유량이 50~80 sccm인 2.78~6.67의 R_{mix} 영역 내에서 상대적으로 높은 OCV와 출력이 얻어지는 것을 알 수 있었으며, 최대의 OCV와 출력 특성은 메탄 유량이 60 sccm인 ($R_{\text{mix}}=3.75$) 경우에 얻어졌고, 그 값은 각각 804 mV, 101.2 mW/cm^2 였다. 다른 단전지들 역시 전 구간에 걸쳐 유사한 결과를 보여주었다. 그러나 최종적으로 얻어진 OCV는 Nernst식에 의해서 얻어지는 이론적인 값보다 상대적으로 낮을 뿐 아니라, 얻어진 최적화된 작동 환경의 R_{mix} 역시 널리 알려진 메탄의 부분 산화 반응의 최적값인 2.0 보다 크다.¹⁵⁾ 이 결과는 본 실험에서 사용한 연료 공급조건에서 추가 메탄이 단실형 고체산화물 연료전지의 작동에 관여하는 부분 산화 반응이 아닌 다른 반응을 통해서 소모되고 있음

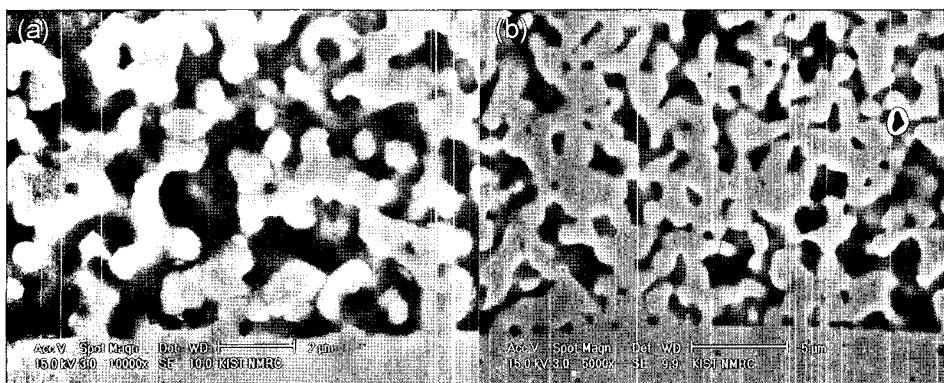


Fig. 2. Cross-sectional SEM images of the (a) anode and (b) cathode of SC-SOFC fabricated by the robo-dispensing method.

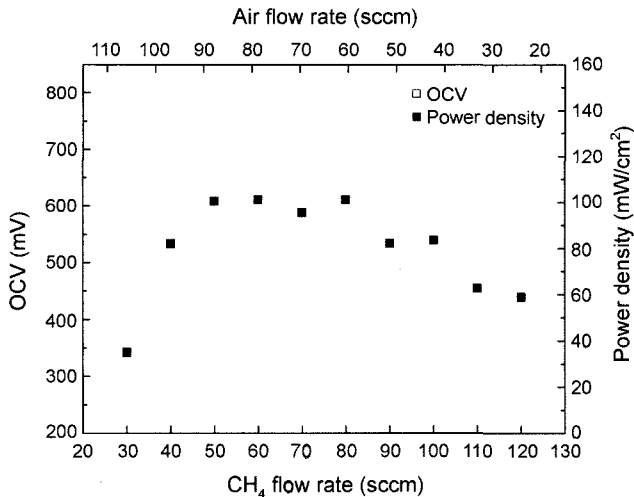


Fig. 3. OCV and power density of single pair electrode SC-SOFC with anode-to-cathode distance of 255 μm under the various methane flow rate from 20 to 120 sccm while the total flow rate of methane and air is kept to 140 sccm with nitrogen carrier gas of 100 sccm.

을 의미하고 있다. 그 원인은 두 가지로 추정되며 첫 번째는 메탄에 대한 촉매활성이 매우 높은 GDC와 Pd를 첨가한 음극과 고온의 작동환경으로 인해서 발생하는 메탄의 완전 연소 반응에 의한 요인, 그리고 두 번째는 반응 가스를 상온의 물에 통과시켜 사용한 결과 함유된 수증기로 인한 수증기 개질(steam reforming) 등이다. 첫 번째 메탄의 완전 연소 반응 가능성에 대한 부분은 Riess 등에 의해서도 이미 보고된 바가 있고,¹⁶⁾ 실제로 본 연구에서 메탄의 완전 연소 반응에 대한 희석제 역할을 하는 것으로 추측되는 질소를 흘려주지 않을 경우 OCV가 발현되지 않는 결과가 이 원인을 뒷받침하고 있다. 동시에 메탄 완전 연소 반응의 부산물인 CO_2 와 H_2O 의 생성은 음극 주변에서 연료인 CO 와 H_2 의 농도를 낮추는 역할을 해 결과적으로 낮은 OCV를 초래할 가능성이 있다. 두 번째로 언급한 수증기 개질의 경우 발열 반응인 메탄 부분 산화 반응과 달리 $\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO} + 3\text{H}_2$ 의 반응식을 가지는 흡열 반응으로, 실제로 건식 가스를 사용할 경우와 습식 가스를 사용할 경우 반응기 내부에 감지되는 발열에 의한 온도 상승이 각각 48°C 와 5°C 로 상당한 차이를 보이는 것으로 미루어 수증기 개질의 존재를 확인할 수 있다. 실제로 최근의 실험에서 위의 결과들을 바탕으로 NiO-YSZ 계의 음극과 건식 가스를 사용한 경우에는 Fig. 3에 나타난 OCV와 출력 특성이 왼쪽으로 편향되며 일반적으로 알려진 $R_{\text{mix}}=2.0$ 의 값 근처에서 최대값을 보이는 것을 확인할 수 있었다. 하지만 본 실험에서는 전극의 형상이 성능에 미치는 영향을 확인하는 것이 주목적으로, 본 실험에서 사용한 단전지가 최대의 성능을 보이는 조건, 즉 900°C 에서 100 sccm의 질소와 60 sccm의 메탄, 80 sccm의 공기

를 흘리면서($R_{\text{mix}}=3.75$) 전극구조와 셀 성능의 관계를 분석하였다.

한 쌍의 음극과 양극을 가지고 있으며, 음극-양극 간격을 변화시킨 단전지들(Fig. 1(a))의 성능을 상기 언급한 작동 환경에서 분석한 결과를 Fig. 4(a)에 정리하였다. 그 결과, 양극-음극간 거리가 255, 270, 443, 783 μm 으로 증가함에도 불구하고 OCV는 각각 804, 820, 790, 782 mV로 거의 변화가 없었으며, 이 사실로 미루어 양극-음극 거리가 단전지의 OCV에는 영향을 미치지 않음을 알 수 있다. 반면에, 출력 특성은 거리의 증가에 따른 오hm 저항(ohmic resistance)의 증가로 인해서 101.2, 90.46, 80.2, 55.6 mW/cm^2 으로 감소하며, 이 결과는 기존에 Hibino 등이 보고한 것과 일치한다.^{8,9)} Fig. 4(b)는 양극-음극 간격을 $\sim 250 \mu\text{m}$ 으로 일정하게 유지하면서 음극-양극의 전극 쌍을 1, 2, 4, 8쌍으로 제작한 단전지들(Fig. 1(c))의 OCV 변화를 보여주는 것으로, 전극쌍의 숫자가 늘어나면서 양

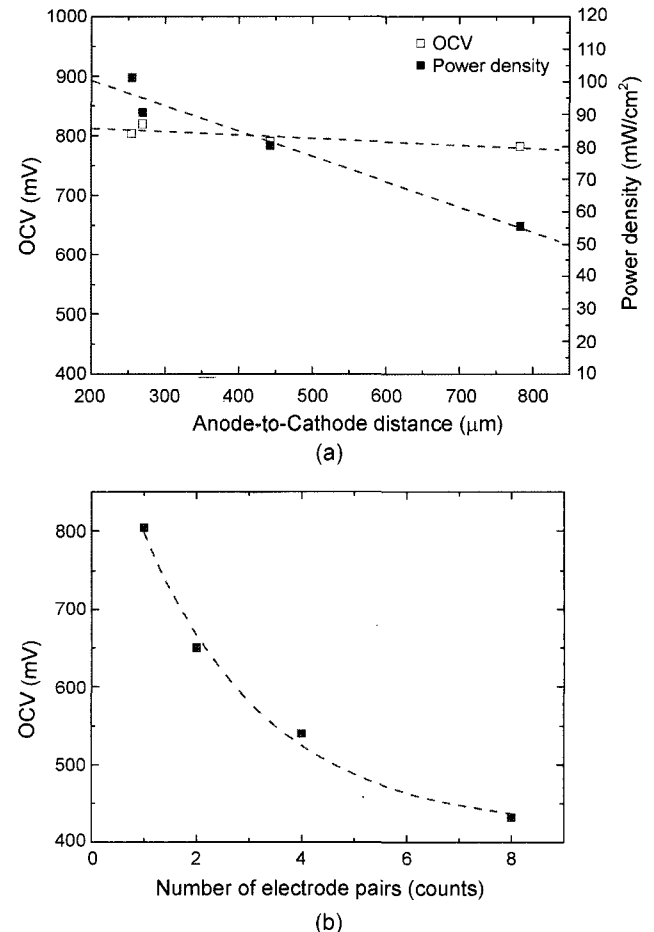


Fig. 4. OCV of SC-SOFC under the mixture gas atmosphere of methane, air and nitrogen at 900°C : (a) the cells with a single electrode pair of varying its interspacing and (b) the cells with multiple electrodes as a function of the increasing number of electrode pairs.

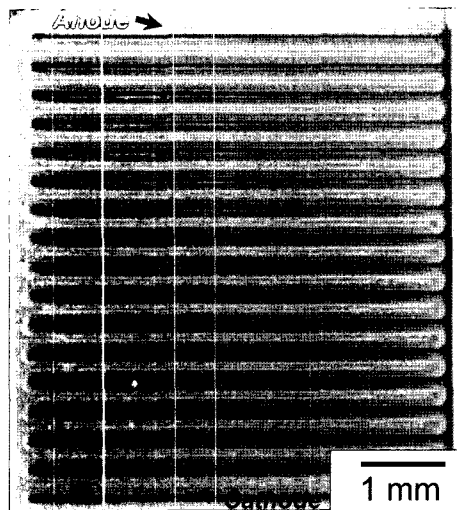


Fig. 5. Photograph of the interdigitated electrode structures composed of NiO-SDC cermet and LSM on the YSZ substrate fabricated by the microfluidic lithography.

극과 음극이 마주하는 면이 증가함에 따라서 OCV가 804, 650, 540, 432 mV로 점차 감소하는 것을 알 수 있다.

좀 더 복잡한 형태의 전극 형상의 경우 전극 형태가 표면 전도형 단일형 고체산화물 연료전지의 성능에 미치는 영향을 알아보기 위해 미세유체 리소그래피법을 통해서 전극 선폭 100 μm , 높이 35 μm 이고, 음극-양극 거리가 50 μm 인 14쌍의 전극이 패터닝된 단전지를 제작하였다. Fig. 5에서 보이는 것처럼 완성된 단전지는 음극과 양극이 치밀하고 복잡하게 형성되어 있으며 전극 내에서 균열이나 박리와 같은 어떤 결함도 관찰되지 않았다. 소결이 끝난 음극과 양극 역시 Fig. 6에 나타난 것처럼 입자간의 연결이 충분히 이루어져 있으며, 고체산화물 연료전지의 전극으로 활용하기에 충분한 기공율을 가지고 있다. 미세유체 리소그래피법을 통해 완성된 단전지 역시 위에서 언급한 것과 동일한 온도와 가스 조성 및 유량 하에서 성능을 분석하였다. 반응 초기에는 OCV가 340~355 mV 사이에서 진동하는 것이 관찰되었지만, 20분이 지난 후 350 mV의

안정된 값을 보여주었으며 최대 출력은 73.5 mW/cm^2 였다. 14쌍의 양극과 음극이 패터닝된 복잡한 형상의 전극을 가지는 단전지의 OCV 역시 이론적인 값보다 상당히 낮은 값으로 앞서 로보 디스펜싱법으로 제작한 단전지를 측정할 결과에서 나타난 것과 같은 맥락에서 이해가 가능하다.

단일형 고체산화물 연료전지의 경우 연료와 공기의 혼합가스가 양쪽 전극에 동시에 노출되는 특수한 작동 환경으로 인해서 가스의 유동 형태, 유량, 조성 등이 OCV와 출력 특성에 크게 영향을 미친다는 사실은 일반적으로 잘 알려져 있다.¹⁷⁾ 단일형 고체산화물 연료전지의 기본적인 작동원리는 음극에서 메탄이 산소와 부분 연소 반응을 일으키고, 양극은 산소를 선택적으로 환원시키는 것으로 기존의 고체산화물 연료전지의 그것과 크게 다르지 않다.¹⁸⁾ 이러한 선택적인 메탄의 부분 연소 반응과 산소의 환원 반응은 음극과 양극에서의 산소 분압(ΔP_{O_2}) 차이를 유발시키게 되고, 이 산소 분압 차이가 OCV를 발생시키는 원동력이 된다. 결국 Fig. 4(b)에서 나타난 것과 같은 전극 형태의 변화에 따른 OCV의 감소는 양극과 음극에서의 산소 분압 차이의 감소와 직접적으로 연관이 있다고 이해할 수 있다. 본 연구에서 사용된 음극과 양극의 조성은 메탄과 산소에 대해서 선택성이 우수한 재료들이기 때문에, 부적절한 반응으로 인한 연료 및 산소의 소모로 인해 발생하는 분압차의 감소는 거의 없다고 판단된다. 그보다는 음극과 양극 각각에서 일어나는 서로 다른 전극반응의 중간 및 최종 생성물들이 전극 복잡 구조에 기인하여 상호 혼합을 일으켜 산소 분압차가 감소되는 것으로 추측된다. 실제로 최근에 Shao 등이 보고한 바에 따르면 버튼 셀(button cell) 형태의 서로 다른 두 개 이상의 단일형 고체산화물 단전지의 스택(stack)을 제작할 때 음극과 양극이 서로 마주보게 배치를 하면 0에 가까운 OCV가 얻어진다고 하며, 이러한 결과는 음극의 반응 생성물이며 상대적으로 낮은 산소 분압을 가지는 CO와 H₂가 양극으로 이동하여 산소 분압차를 낮추기 때문이라고 추론하였다.⁵⁾ 이러한 반응 생성 가스의 상호 혼합은 대류 또

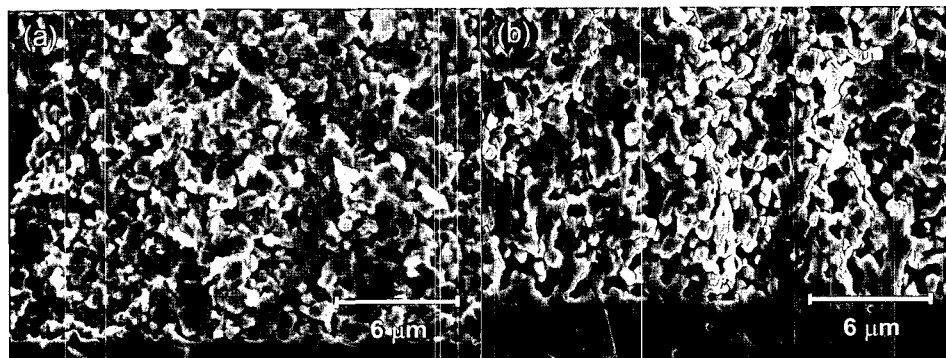


Fig. 6. SEM images of the (a) anode and (b) cathode in the fabricated SC-SOFC via microfluidic lithography after sintering.

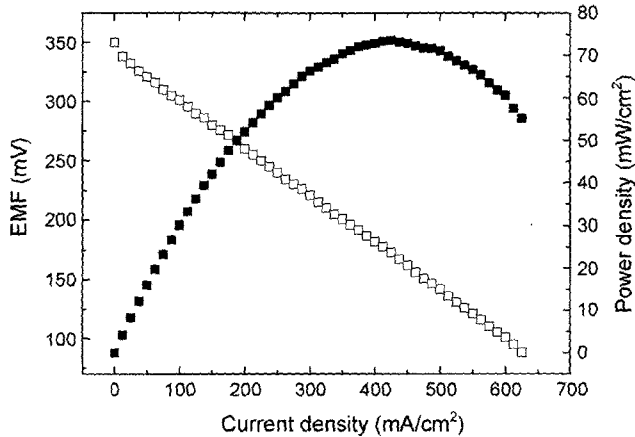


Fig. 7. I-V discharge properties of the micro-fabricated SC-SOFC with interdigitated electrodes at 900°C using a mixture gas of nitrogen, methane and air in a volume ratio of 100 sccm, 60 sccm, and 80 sccm.

는 난류의 발생에 의해서 일어날 것이다. 앞서도 언급한 바와 같이 탄화수소를 연료로 사용하는 단일형 고체산화물 연료전지의 음극에서 일어나는 부분 산화 반응은 매우 강력한 발열반응이며, 실제로 이로 인한 음극 주변에서의 온도 상승이 관찰된다. 결국 양극보다 음극 주변의 온도가 상대적으로 높고, 이 온도차이가 원동력이 되어 음극의 반응 생성물들이 양극 쪽으로 대류가 발생하게 되며 결국 산소 분압차가 줄어들게 되는 것이다. 위의 결과에 의하면 Fig. 4(b) 및 Fig. 7에 나타난 단전지들의 성능은 음극-양극 쌍의 수가 증가하면서 점차적으로 OCV가 감소하는 형태를 보이고 있는데, 이것은 점차적으로 음극과 양극이 마주하는 면이 증가함에 따라서 앞서 언급한 음극과 양극의 반응 부산물의 혼합으로 인한 산소 분압차의 감소가 더욱 심해진 결과라고 이해할 수 있다.

따라서 본 연구에서 제안한 양극과 음극의 거리가 매우 가깝고, 전극 가지가 여러 쌍이 복잡하게 패턴되어 있는 표면 전도형 단일형 고체산화물 연료전지에서 관찰된 OCV의 강하는 음극과 양극의 반응 생성물들의 상호 혼합이 진행됨에 따른 것이라고 판단되며, 전극의 구조가 복잡해져 양극과 음극이 마주하는 영역이 늘어날수록 그 정도가 커지게 된다. 현재 이러한 OCV의 강하를 최소화하여 성능을 향상시키는 연구가 진행 중에 있다.

4. 결 론

본 연구에서는 표면 전도형 단일형 고체산화물 연료전지에서 패턴된 전극의 형상이 단전지의 성능에 미치는 영향을 알아보기 위해서, 전극의 형태가 다른 단전지들로부터 디스펜싱 기법과 미세유체 리소그라피법을 통해 제작하였고, 그 성능을 관찰하였다. 양극과 음극이 한 쌍만

존재하는 단전지에서는 804~782 mV의 OCV가 관찰된 반면에, 전극의 형상이 점차 복잡해져 양극-음극 쌍의 수가 증가함에 따라서 OCV가 크게 감소하는 것을 확인할 수 있었다. 이 결과는 음극의 반응 생성물이 양극 주변으로 이동하면서 산소 분압차를 감소시켜 나타나는 것으로 판단되며, 양극과 음극이 마주하는 면이 늘어남에 따라서 그 영향이 커지는 것으로 판단된다. 결국, 이와 같이 복잡한 형상의 미세 전극을 가지는 단전지의 경우, 최대의 성능을 얻기 위해서는 반응 가스 혼합으로 인한 OCV 강하를 억제하기 위한 방안이 필요하다.

Acknowledgment

이 논문은 2005년도 정부재원(교육인적자원부 학술연구조성사업비)으로 한국학술진흥재단의 지원을 받아 수행된 연구임(KRF-2004-041-D00331).

REFERENCES

1. N. Q. Minh, "High Temperature Fuel Cells. Part II : The Solid Oxide Fuel Cell," *Chemtech.*, **21** 120-26 (1991).
2. N. Q. Minh, "Ceramic Fuel Cell," *J. Am. Ceram. Soc.*, **76** [3] 563-88 (1993).
3. W. Gool, "The Possible Use of Surface Migration in Fuel Cells and Heterogeneous Catalysis," *Philips Res. Rep.*, **20** 81-93 (1965).
4. T. Hibino, A. Hashimoto, T. Inoue, J. Tokuno, S. Yoshida, and M. Sano, "A Low-Operating-Temperature Solid Oxide Fuel Cell in Hydrocarbon-Air Mixtures," *Science*, **288** 2031-33 (2000).
5. Z. Shao and S. M. Haile, "A Thermally Self-Sustained Micro Solid-Oxide Fuel-Cell Stack with High Power Density," *Nature*, **431** 170-73 (2004).
6. T. Suzuki, P. Jasinski, V. Petrovsky, H. U. Anderson, and F. Dogan, "Anode Supported Single Chamber Solid Oxide Fuel Cell in CH₄-Air Mixture," *J. Electrochem. Soc.*, **151** A1473-76 (2004).
7. T. Suzuki, P. Jasinski, H. U. Anderson, and F. Dogan, "Role of Composite Cathodes in Single Chamber SOFC," *J. Electrochem. Soc.*, **151** A1678-82 (2004).
8. T. Hibino, K. Ushiki, and Y. Kuwahara, "A Novel Cell Design for Simplifying SOFC System," *Solid State Ionics*, **81** 1-3 (1995).
9. T. Hibino, K. Ushiki, and Y. Kuwahara, "New Concept for Simplifying SOFC System," *Solid State Ionics*, **91** 69-74 (1996).
10. J. Fleig, H. L. Tuller, and J. Maier, "Electrodes and Electrolytes in Micro-SOFCs: A Discussion of Geometrical Constraints," *Solid State Ionics*, **174** 261-70 (2004).
11. J. L. Hertz and H. L. Tuller, "Electrochemical Characterization of Thin Films for a Micro-Solid Oxide Fuel Cell," *J. Electroceram.*, **13** 663-68 (2004).
12. Y.-B. Kim, S.-J. Ahn, J. Moon, J. Kim, and H.-W. Lee,

- “Direct-Write Fabrication of Integrated Planar Solid Oxide Fuel Cells,” *J. Electroceram.*, accepted
13. S. Ahn and J. Moon, “Vacuum-Assisted Microfluidic Lithography of Ceramic Microstructures,” *J. Am. Ceram. Soc.*, **88** 1171-73 (2005).
 14. T. Hibino, A. Hashimoto, M. Yano, M. Suzuki, S. Yoshida, and M. Sano, “High Performance Anodes for SOFCs Operating in Methane-Air Mixture at Reduced Temperatures,” *J. Electrochem. Soc.*, **149** A133-36 (2002).
 15. T. W. Napporn, X. J. Bedard, F. Morin, and M. Meunier, “Operating Conditions of a Single-Chamber SOFC,” *J. Electrochem. Soc.*, **151** A2088-94 (2004).
 16. I. Riess, “The Significance of Impeded Reactions in Solid State Electrochemistry,” *Solid State Ionics*, **176** 1667-74 (2006).
 17. I. C. Stefan, C. P. Jacobson, J. Visco, and L. C. De Jonghe, “Single Chamber Fuel Cells: Flow Geometry, Rate, and Composition Considerations,” *Electrochem. Solid-State Lett.*, **7** A198-200 (2004).
 18. I. Riess, P. J. van der Put, and J. Schoonman, “Solid Oxide Fuel Cells Operating on Uniform Mixtures of Fuel and Air,” *Solid State Ionics*, **82** 1-4 (1995).