

고효율 분산발전 SOFC용 고신뢰성 소재/부품의 양산기반 기술개발

글 _ 손현민, 박상현, 이상철, 박상균, 국병근
포스코에너지

1. 서론

SOFC는 차세대 에너지기술로서 주목을 받고 있으며, 연료전지 발전 기술 중 친환경, 고효율, 장수명, 다양한 연료 사용 등의 장점이 있다. 국내외 많은 기관들이 SOFC의 스택과 시스템 연구 개발을 하고 있으나, 핵심 부품이자 원천 기술인 단전지 및 원료 분말의 공정에 대한 연구 개발은 미비한 상황이다. 따라서 상용화를 결정하는 핵심요인인 고신뢰성 소재/부품의 양산기반 기술개발과 경제성 확보를 위하여 포스코에너지에선 2009년부터 지식경제부 과제를 통하여 supply chain 구축 및 자체 공정을 확립하는 국책과제를 수행하였고, 이를 통하여 단전지 제조 공정의 윈도우를 넓히고, 원가절감 및 중소기업과의 동반 성장을 할 수 있는 기틀을 마련하였다. 본 자료를 통하여 포스코에너지 SOFC 단전지의 국산화 연구 성과를 소개하려고 한다.

2. 실험방법

2.1. 셀 제작

본 연구에서는 Compression Molding(일축성형, 이하 C/M)법을 이용하여 연료극 지지형 400cm² 단전지를 제작하였다. 단전지 제조시 연료극 및 연료극 기능층, 전해질, 확산 방지층 공기극 기능층, 공기극은 각각 NiO, YSZ, GDC, LSCF를 사용하였다. 특히 GDC 확산 방지층을 제외한 전 층에 지식경제부 과제를 통해 구축된 supply

chain인 삼전순약의 원료 분말 및 에프셀텍 페이스트를 적용하였다.

지지체 성형을 위하여 NiO-YSZ 원료 분말을 24시간의 불밀링으로 슬러리화 하고, 성형의 용이성을 위하여 열분무 건조기로 구형의 과립을 제조하였다. 지지체 성형을 위하여 앞서 언급한 제조기술인 C/M법을 이용하였으며, 이렇게 성형된 지지체는 연료극 기능층 및 전해질 스크린 인쇄를 위한 강도 부여를 위해 가소결 공정을 진행하였다. 가소결이 완료된 지지체는 스크린 인쇄를 통해 연료극 기능층과 전해질층을 형성하며, 이후 계면간의 접합 강도를 부여하고 전해질의 치밀화를 위해 고온에서 공소결을 진행하였다. GDC층은 전해질의 기밀도에 영향을 미치는 LSCF의 확산 방지를 위해 형성한 층으로 ADM(aerosol deposition method)법을 적용하여 1μm² 두께로 형성하였다. 확산방지층의 두께에 대한 최적화는 관련 문헌 조사등과 실험을 병행하고 있으며, 10,000시간 이상의 장기 신뢰성에도 대응이 가능한 공정 최적화를 진행할 예정이다. 공기극 기능층 및 공기극은 스크린 인쇄법을 통해 형성하였다. 공기극 소결 온도는 공기극 기능층과 공기극 사이의 계면 접합 강도와 적절한 기공률을 확보할 수 있는 최적의 조건을 적용하였다. 포스코에너지에서 개발한 400cm² 단전지 제조 공정 흐름도는 Fig. 1과 같다.

2.2. 셀 평가

C/M법 및 스크린 인쇄법을 적용하여 제작한 단전지를

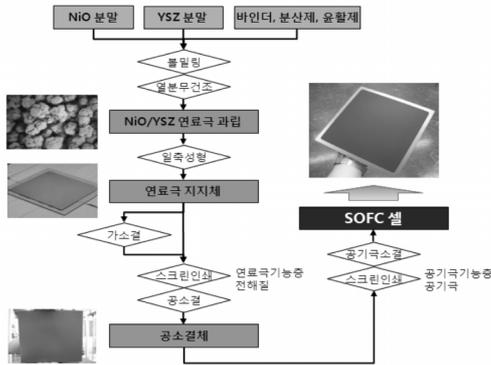


Fig. 1. 포스코에너지 평판형 단전지 제조 공정 흐름도

최적화된 당사 평가 프로세스에 따라 평가장치에 장착되어 있는 전기로를 승온시키면서 밀봉재의 유기물을 제거하였고 면압을 서서히 늘려가며 밀봉을 유지하였다. 정해진 프로세스에 따라 연료극엔 질소/수소, 공기극엔 공기를 주입하였고, 환원이 서서히 진행되면서 연료극의 수소 화학양론량을 늘리는 등 정상적인 출력성능을 나타낼 수 있도록 전처리 과정을 수행하였다. 가스의 유로가 형성된 분리판은 Crofer 22APU 소재를 사용하였으며, 흐름은 내부 매니폴드형이면서 co-flow 방식을 적용하였다. 연료극 집전체로는 Ni-foam을, 공기극 집전체로는 CCL(cathode current collector layer : RIST에서 개발한 공기극 집전체로 백금 대비 동등 수준의 전기전도도를 보이며 가격은 5% 정도인 원가절감형 소재)을 사용하였다. 밀봉재는 지식경제부과제의 위탁과제 수행업체인 씨

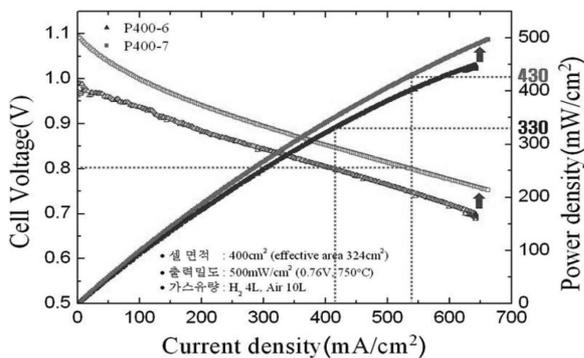


Fig. 3. 포스코에너지에서 제작된 400cm² 단전지 I-V 성능 평가 결과.

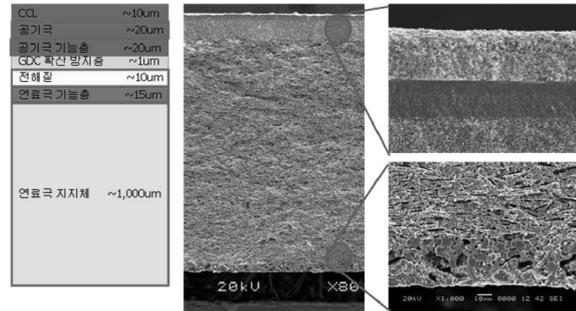


Fig. 2. 포스코에너지 단전지 수직 절단면 이미지.

모텍에서 개발한 유기바인더 성분을 함유한 glass ceramic base 개발품을 사용하였다. 출력성능 시험은 직류전자부하장치인 scribner 890C를 사용하여 인가하는 전류를 변화시키면서 출력을 측정하는 방법으로 수행되었고, 운전조건은 750°C 0.7V을 기준으로 측정하였다. 장기 신뢰성 성능 평가 또한 동일한 직류전자부하장치를 사용하였으며 정전류 조건인 400 mA/cm²와 320 mA/cm² 두가지 조건으로 평가하였다.

3. 결과 및 고찰

2차년도에 수행하였던 국산 LSM-YSZ 공기극 기능층 및 YSZ 전해질을 적용하여 제작한 400cm² 단전지의 출력성능 평가 결과는 750°C, 0.7V에서 0.37W/cm²의 결과를

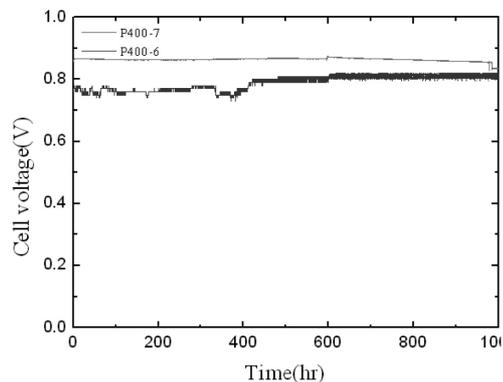


Fig. 4. 포스코에너지에서 제작된 400cm² 단전지 열화를 평가 결과.

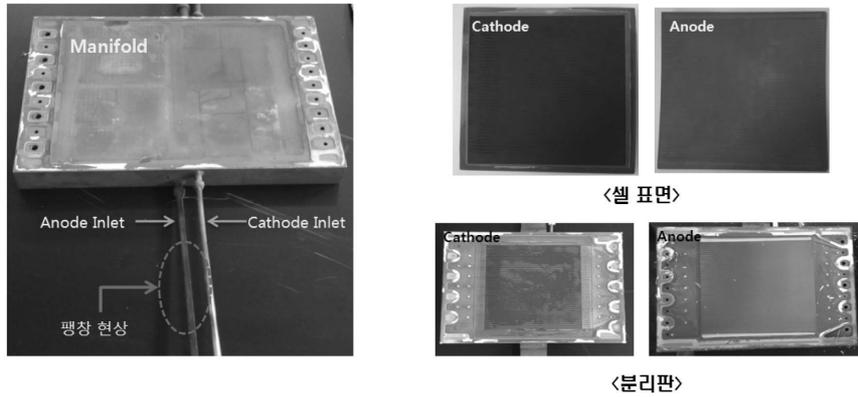


Fig. 5. 400cm² 단전지의 1,000시간 열화를 평가 후 해체 분석 이미지.

보였다. 당해년도에는 국산화 원료 분말 및 고성능 공기극인 LSCF를 적용한 400cm² 단전지를 제작 후 750°C, 0.7V에서 출력 성능 평가를 수행한 결과 공기극을 LSM 기반으로 제작한 2차년도 단전지 대비 30% 이상 향상된 0.55W/cm²로 성능을 얻었다. 이는 국산 원료 분말 적용 및 제조된 단전지의 성능이 상용 단전지의 평가 결과와 동등한 수준이라는 것을 보여준다. Fig. 3은 삼전순약에서 개발한 NiO, YSZ, LSCF 원료 분말 및 에프셀텍에서 제조한 연료극 기능층, 전해질, 공기극 기능층, 공기극 등을 적용하여 C/M법으로 제작한 셀의 I-V curve 및 출력 성능 측정 결과이다. 또한 이 단전지를 통해 장기 열화를 평가를 진행하였으며 1,000시간 측정 결과 최종 목표인 0.5%/kh 수준을 넘는 0%/kh 목표를 달성하였다. (Fig. 4)

본 과제의 최종목표인 0.4W/cm² 이상 출력성능을 갖기 위해서 포스코에너지는 누설률 및 열화율 개선을 위해 클린룸 구축, 층간 접합강도 개선 등의 공정 최적화를 진행하였으며, 셀 성능 향상을 위해 연료극 기공률 개선 등의 공정 개선을 진행하였다. 1,000시간의 장기 신뢰성 평가 후 단전지를 Fig. 5와 같이 해체 분석하였고, 육안으로는 외형상 열화 및 평가 전후간의 변화를 발견할 수 없었다. SEM/EDS로 미세 조직 분석 결과 1,000시간의 장기 신뢰성 평가 후에도 계면 접합이 우수하였고, 확산방지층을 통해 물질의 이동이 없음도 확인하였다. 이러한 계면 접합의 우수함을 통해 1,000시간 이상의 운전에서도 열화가 발생하지 않은 것으로 판단된다. (Fig. 6)

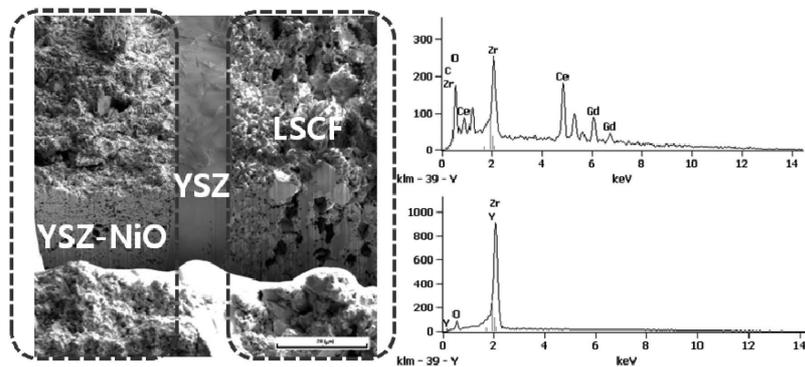


Fig. 6. 400cm² 단전지의 1,000시간 열화를 평가 후 SEMEDS 분석 결과.

4. 결론

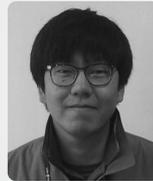
국산화 83% 원료 분말을 최적화된 당사 공법으로 400cm² 단전지를 제작하였을 때 기존 LSM 공기극 적용 대비 30% 수준 출력 성능 개선된 0.55W/cm²의 출력을 얻었다. 또한 당사에서 확립한 제조 공정과 클린룸 구축 등 환경 개선 작업을 통해 계면접합이 우수하고 결함이 없는 단전지를 개발하여 장기신뢰성 1,000시간 실측시 0%/kh의 결과를 얻는 등 당해년도 정량지표를 초과하여 달성 할 수 있었다.

향후 지속적인 연구개발을 통해 국산화 100% 원료 분말을 적용하여 경쟁사 대비 우수한 성능을 갖는 고성능 장수명,대면적 단전지를 구현, 상용시스템 적용을 목표로 연구를 지속하고 있다.

감사의 글

이 자료는 2009년부터 정부(지식경제부)의 지원을 받아 수행하였습니다. 이에 감사드립니다.

●● 손현민



- 2006년 홍익대학교 재료공학과 석사
- 2006년 삼성 SDI 전임연구원
- 2011년 포스코에너지 선임연구원