

# 고체산화물 연료전지 (Solid Oxide Fuel Cell) 스택 (Stack)의 신뢰성과 경제성 향상을 위한 세라믹재료기술의 중요성

글 \_ 윤경중, 이종호, 손지원, 김병국, 제해준, 이해원  
한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터

## 1. 서론

수소와 탄화수소를 자유롭게 연료로 사용할 수 있고 에너지 변환 효율이 높은 고체산화물 연료전지 (SOFC)는 대기오염을 억제할 수 있는 가장 유력한 미래 동력원의 하나로 집중 조명을 받고 있다. 차세대 하이브리드 발전 시스템을 형성하는 핵심기술로 주목받고 있는 SOFC 기술은 고온에서의 재료물성 한계를 극복할 수 있는 새로운 스택 설계와 새로운 개념의 소재 적용을 통해 신뢰성 향상과 제조단가 저감을 위한 노력을 경주하고 있다. 지난 10여 년간 SOFC 연구는 비약적인 발전을 거듭해와 성능지수인 전력밀도가 10배 이상 증가하였으며 현재

도 새로운 소재발굴과 미세구조 개발을 바탕으로 스택 및 시스템의 성능 및 내구성을 향상시키기 위한 다양한 연구개발 활동이 전개되고 있다.

다른 형태 또는 다른 원리로 작동하는 타 연료전지와 비교하여 SOFC는 대부분의 구성 물질이 고상재료로 구성되어 있고, 작동온도가 600~1000°C에 이르는 고온 영역에서 운전이 이루어지며, 단전지를 구성하고 제조하는데 형상이나 형태의 제약이 따르지 않는다는 특징을 가지고 있다. SOFC 단전지는 크게 관형과 판형의 두 가지 형태로 나누어지고, 기밀성을 가진 치밀질 전해질을 가운데 두고 양쪽에 두 개의 전극이 샌드위치를 이루는 구조로 구성된다. Fig. 1과 같이 SOFC의 음극(연료극)과

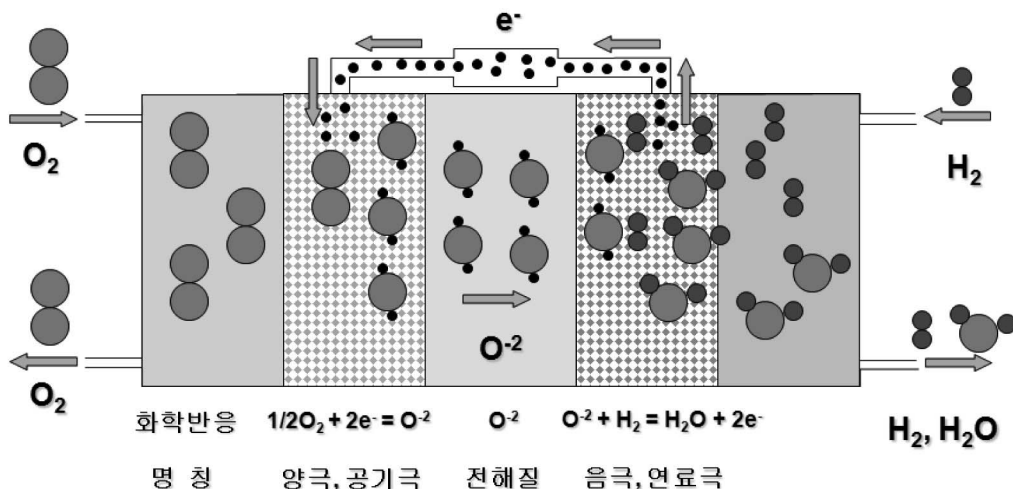


Fig. 1. 고체산화물 연료전지의 구조 및 작동원리.

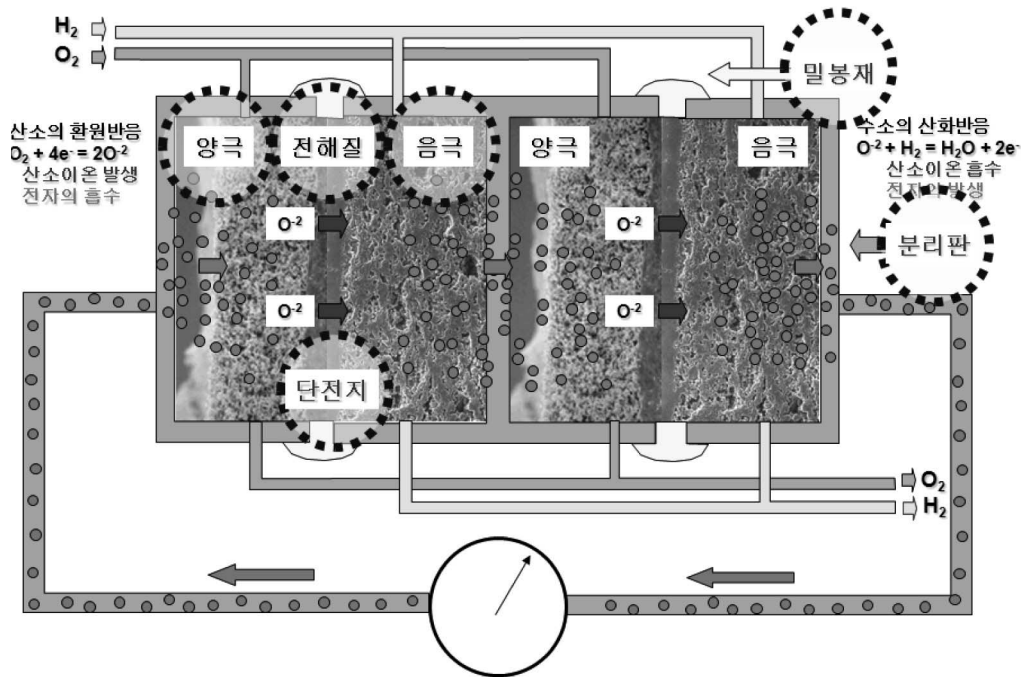


Fig. 2. 평판형 SOFC 스택의 구성요소 및 스택킹 구조

양극(공기극)으로 각각 연료와 공기를 공급하면 전해질의 음극 쪽에서는 전해질을 통해 이동한 산소이온이 수소연료와 반응하여 물을 생성하면서 전자를 방출하게 되는 반면, 반대쪽에서는 공기로부터 형성된 산소이온이 산소이온 농도구배에 따라 음극 쪽으로 이동한다. 따라서, 양극과 음극이 전기적으로 연결된 외부회로를 형성하면 전자는 음극에서 양극으로 흐르게 된다. 이 때 전해질에 산소이온이 지속적으로 공급되고, 산소이온이 양극에서 음극으로 이동하며 전체적인 전하평형을 유지한다면 연료의 산화반응을 통해 유용한 전력을 생산할 수 있

다. 이때 반응 부산물로는 순수한 물과 열만 배출되어 이 또한 유용하게 활용 될 수 있다.

한편 이러한 SOFC 단전지들을 직렬로 연결하여 고용량화 시킨 것이 스택이며 스택을 구성하기 위해서는 Fig. 2에서와 같이 단전지들을 연결시키기 위한 분리판과 단전지 양단의 연료와 산화제간의 혼합을 방지하기 위한 밀봉재를 필요로 한다. Table 1에는 이러한 스택을 구성하는 스택 구성요소별 요구조건들을 정리하여 놓았다.

## 2. 본론

스택을 구성하는 대부분의 구성 부품에 세라믹 재료를 적용하는 SOFC는 높은 발전효율 및 에너지효율, 고온운전에 의한 사용연료의 선택 자유도 및 연계발전 가능성 등 매우 많은 장점에도 불구하고 기술개발 및 상용화추진 속도가 다른 여타의 연료전지에 비하여 현저히 느린 페이스를 보여주고 있다. 기술개발이 지연되는 가장 근본적인 이유는 앞서도 언급하였듯이 취성을 가진 세라믹 재료를 기반으로 하기 때문이며 이로 인해 언제나 공정

Table 1. 고체산화물 연료전지 스택 구성요소별 요구조건

구성요소	요구조건				
	전도성	안정성	화학적 반응	기공도	열팽창
전해질	높은 이온전도도 낮은 전자전도도	산화 및 환원분위기 하에서 화학적, 상, 형상, 치수 안정성	주위 구성부품과 화학반응이나 상호확산이 없을 것	치밀조직	주위 구성요소와 열팽창계수가 같을 것
양극	높은 이온전도도 높은 전자전도도			충분한 기공	
음극	높은 이온전도도 높은 전자전도도			충분한 기공	
분리판	낮은 이온전도도 높은 전자전도도			치밀조직	
밀봉재	낮은 이온전도도 낮은 전자전도도			치밀조직	

결함에 민감한 구조적 안정성, 복잡한 공정에 의한 공정 및 미세구조의 재현성, 그리고 부품의 신뢰성을 일정 수준에서 유지할 수 있어야만 시스템으로서의 SOFC 기술 개발이 가능하다. 물론 기술개발 수준에서 생산 수준으로 확대하는 스케일업 과정에서 또 한 번의 기술적 장벽이 존재하지만 순조로운 기술개발을 수행하기 위한 일차적인 단계 조차도 상당히 많은 장비와 자본의 투자를 요구한다.

지금까지 SOFC 연구개발은 전력밀도 향상을 위한 새로운 전해질과 전극 소재의 개발과 이를 바탕으로 하는 고성능 단전지 구조의 개발 그리고 출력용량 증대를 위한 다양한 형태의 스택개발에 집중되어 왔다. 상기한 노력들로 인하여 SOFC 기술은 전기화학적 성능향상과 내구성 측면에서 놀라운 발전을 거듭해 왔고 앞으로도 그 발전 속도는 더욱 빨라질 것으로 예상된다. 그러나 SOFC 기술은 불행하게도 다른 여타의 연료전지와 달리 취성재료인 세라믹 소재와 부품을 기반으로 하는 고온 연료전지 기술인 점을 간과하여 세라믹 부품과 스택의 열기계적 내구성 향상을 위한 연구개발 분야에서 개발전략 상의 수많은 오류를 반복하고 있는 실정이다. 예를 들면 열팽창계수차를 줄여 단전지 내에 발생하는 부정합 내부응력을 줄이려는 전략은 다공성 전극구조의 신뢰성 확보에는 충분조건이 아니라는 사실이다. 즉 다층구조로 형성되는 전극의 열기계적 신뢰성을 향상시키기 위해서는 열팽창계수의 접합성과 함께 탄성계수차의 제어가 필수적이라는 것이다.

따라서 SOFC 스택을 구성하는 세라믹 부품들과 스택 자체는 취성을 가지고 있다는 점을 스택의 개발전략에 반영하여야 하며, 이러한 취성 특성을 극복할 수 있는 부품 및 스택의 설계와 재현성이 우수한 제조공정기술을 바탕으로 경제성과 신뢰성을 갖춘 SOFC 스택을 개발하는 것이 필요하다. 또 한 가지 고려해야 할 점은, SOFC 스택개발 과정에서 언제나 직면하는 현실적인 문제는 소재 물성의 한계이며, 불행하게도 SOFC 스택에서 요구하는 전기화학적 물성과 열기계적 물성을 동시에 만족할 수 있는 단일조성의 세라믹 소재를 찾기는 매우 어렵다는 점이다. 따라서 수많은 복합기능 세라믹 재료 개발에

성공적으로 적용되어온 복합재료들을 통해 SOFC 스택에서 요구되는 다양한 기능을 만족시키기 위한 소재개발 전략이 필요하다. 구성물질의 수가 증가함에 따라 조대결합의 발생확률이 높은 복합재료의 특성을 고려하여 제조공정기술의 개발에도 적절한 연구개발 노력을 투자한다면 스택개발 전략을 만족할 수 있는 요소부품의 신뢰성과 경제성을 만족할 수 있을 것으로 기대된다. 마찬가지로 스택의 제조와 운전 과정에서 나타나는 소재물성의 한계를 체계적으로 분석하여 대응함으로써 스택의 신뢰성을 향상시켜야 하며 이를 재현성이 우수한 스택제조기술로 발전시켜야 한다.

경제성 확보 문제에 대한 SECA (DOE)의 분석은 다양한 형태의 SOFC 셀, 스택, 스택모듈, 시스템에 대한 비교검토를 보여주고 있다. 물론, 형태별 제조단가에서 상당한 차이를 보여주고 있지만, 경제성 확보를 위한 관건은 연산 50~100 MW 규모의 양산 상태에 도달하면 원가를 현저히 감소시킬 수 있을 것으로 예상하고 있다. 특히 생산규모가 5 MW에서 50 MW 이상 규모로 약 10배 증가할 때 원가는 1600\$ 이상에서 약 200\$ 수준으로 감소하여 원가저감 효과는 거의 7~8배에 달할 것으로 예상하고 있다. 대조적으로 유효전극면적을 100cm<sup>2</sup>에서 1000cm<sup>2</sup>로 증가할 때 원가저감 효과는 불과 10~20%에 지나지 않을 것으로 예상하고 있다. 이러한 분석 결과는 상용화 시스템 기술 개발을 주도하고 있는 Versa Power, NGK, Stackcera, Topsoe, CFCL 등 많은 선진업체들이 대부분 100cm<sup>2</sup> 내외의 전극 유효면적을 가지는 단전지를 기반으로 하는 스택과 시스템 개발에 주력하는 점을 고려하면 우연한 일치라고 보기 어렵다.

최근에 확인된 해외 선진업체의 구체적인 기술개발 방향은 기술개발이 비교적 빠르게 진행되고 있는 평판형 단전지를 기반으로 하는 업체를 중심으로 진전 상황이 보고되고 있다. 대부분의 선진 업체들이 1~3 kW 규모에서 연료의 스팀내부개질기술을 접목하여 거의 50~60%에 달하는 우수한 발전효율을 구현하고 있고 혼합전도성 공극 채용을 통해 운전온도를 700°C 이하로 낮추어 내구성 향상의 기틀을 마련함은 물론 출력밀도 자체도 탁월한 결과를 보여주고 있다. 선진업체들의 이러한 기술적



진전은 모두 계면저항을 줄인 단전지와 접촉저항을 현저히 줄이는 스택 구성기술을 바탕으로 이루어지고 있다. 단전지에서는 혼합전도성 공기극과 YSZ 전해질간의 화학반응을 억제하기 위한 확산반응 억제층을 결합없이 치밀하게 형성하는 공정이 핵심공정으로 판단된다. 즉, 소결기판 상에 후막 또는 박막을 도포하고 후소결을 통해 치밀한 GDC 막을 얻는 것은 제한소결 중에서도 가장 가혹한 환경에서 이루어지기 때문에 공정결함을 억제하는 것이 용이하지 않은 실정이다. 반면에 스택에서의 접촉저항을 현저히 줄여 우수한 스택 출력특성과 구성 단전지의 출력 재현성을 보여주는 선진업체들은 대부분 압축밀봉재를 적용하는 공통점을 가지고 있다는 점에 주목할 필요가 있다. 스택을 구성하는 단전지의 개체수가 늘어나면 밀봉 길이 및 면적은 급격히 증가하지만 단전지에 언제나 존재하는 평탄도와 표면조도의 차이는 점탄성 유체인 유리기반의 밀봉재의 균일한 분포를 위협하는 요인으로 작용한다. 특히 유의하여야 할 점은 스택기밀성을 위한 점탄성 유리의 균일한 재분포는 일차적으로 온도와 압력의 함수이지만, 접촉저항을 최소화하기 위해서는 스택 전체에 걸쳐 밀봉압력의 균일한 분포가 이루어져야 한다. 다시 말하면, 압축밀봉재의 작용은 스택 기밀성보다는 스택내의 부품간의 접촉저항 측면에서 살펴볼 필요가 있다. 또한 내구성 확보를 위한 가장 중요한 요소기술이 금속 분리판의 산화거동 억제기술로 인식되면서 내산화 전도성 코팅층 소재와 공정 기술 개발이 다양하게 전개되고 있다. 지금까지 나타난 결과는 비교적 전도성이 우수하고 Cr 산화물 스케일 성장속도를 줄이고 Cr 휘발을 효과적으로 억제하는 데 Mn-Co 스피넬 산화물 등이 가장 유력한 후보소재로 등장하였다. 가스공급을 위한 유료가 존재하기 때문에 다양한 코팅방법이 시도되고 특정코팅방법을 적용할 수 있는 유로형상에 대한 연구결과도 보고되고 있다. 가장 많이 시도되고 있는 방법은 용사코팅법과 슬러리 코팅법이지만, 용사코팅을 이용한 코팅소재와 코팅두께의 효과를 비교하고 전기저항 증가를 통해 내구시간을 예측한 Julich 연구소의 결과는 4만 시간의 내구성을 확보하는 데 큰 문제가 없을 것으로 예상하고 있다. 그러나, 현실적으로 용사코팅법을 실제 유로형

상 표면에 적용하여 결합없는 치밀한 코팅층을 형성하는 것은 기술적인 도전과제이다. 반면에 슬러리 코팅법을 적용한 경우에는 용사코팅법에 비하여 Cr 산화물 스케일의 성장이 매우 빠르게 진행되면서 전기저항 증가에 따른 성능 및 내구성의 저하를 피할 수 없을 것으로 판단된다.

### 3. 결론

전 세계적으로 많은 산업체와 연구주체들이 SOFC 기술 개발을 위해 다양한 노력을 경주하고 있고 미국의 Bloom Energy를 선두로 일본, 독일, 호주의 선진업체들이 다양한 응용분야에서 탁월한 성능을 구현하는 결과들을 도출하고 있다. 단전지의 형태에 상관없이 국내 업체들의 연구개발 노력도 점진적으로 확대되면서 다양한 형태의 단전지를 기반으로 하는 시스템기술 개발이 이루어지고 있다. 앞서 소개한 SECA의 경제성 분석이 단전지 형태에 따른 스택 및 시스템 제조원가의 차이를 기술하고 있지만, 시스템에서의 장단점에 따라 운전온도와 응용분야의 차별화가 이루어질 수 있기 때문에 늦었지만 다양한 형태의 단전지 기반 시스템기술 개발은 경쟁관계이기도 하지만 오히려 공통에너지기술 분야에 대한 더 많은 투자가 이루어져 기술적 장애요인들을 더욱 효과적으로 극복할 수 있는 계기를 제공할 것으로 기대된다. 부품 기술 개발 측면에서는 단전지 제조공정과 금속분리판 코팅공정 등과 같이 치밀한 코팅층을 대기 중에서 경제적으로 형성할 수 있는 방법의 모색이 필요하고, 스택체결 공정에서는 스택전체에 걸쳐 고른 밀봉압력을 통해 스택 기밀성 향상과 접촉저항 감소를 동시에 얻을 수 있어야 한다. 대부분의 기술개발 노력이 분산발전 분야에 집중되고 있지만 요소기술들의 발전과 다양한 연료체계에서의 성능과 내구성 향상이 이루어지면 고체산화물 연료전지는 수송용과 휴대용 분야로도 내연을 확대할 수 있을 것으로 예상된다.

●● 윤경중



- 서울대학교 재료공학과 학사
- University of Florida, Materials Science and Engineering 석사
- Boston University, Manufacturing Engineering 박사
- 한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터 선임연구원

●● 이종호



- 서울대학교 무기재료공학과 학사
- 서울대학교 무기재료공학과 석사
- 서울대학교 무기재료공학과 박사
- 한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터 책임연구원

●● 손지원



- 서울대학교 무기재료공학과 학사
- 서울대학교 무기재료공학과 석사
- Stanford University, Materials Science and Engineering 박사
- 한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터 책임연구원

●● 김병국



- 서울대학교 무기재료공학과 학사
- 서울대학교 무기재료공학과 석사
- 서울대학교 무기재료공학과 박사
- 한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터 센터장

●● 제해준



- 서울대학교 무기재료공학과 학사
- 한국과학기술원 재료공학과 석사
- 한국과학기술원 재료공학과 박사
- 한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터 책임연구원

●● 이해원



- 서울대학교 무기재료공학과 학사
- 서울대학교 무기재료공학과 석사
- University of Florida, Materials Science and Engineering 박사
- 한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터 책임연구원