

## 원통형 고체산화물 연료전지 스택 제작 및 성능평가

김완제 · 이승복<sup>†</sup> · 송락현 · 박석주 · 임탁형 · 이종원  
한국에너지기술연구원 수소연료전지연구단

### Fabrication and Performance Evaluation of Tubular Solid Oxide Fuel Cells Stack

WANJE KIM, SEUNGBOK LEE<sup>†</sup>, RAKHYUN SONG, SEOKJOO PARK,  
TAKHYOUNG LIM, JONGWON LEE

Hydrogen and Fuel Cell Center, Korea Institute of Energy Research, 102 Gajeong-ro,  
Yuseong-gu, Daejeon, 305-343, South Korea

**Abstract** >> In present work, optimized the manufacturing process of anode-supported tubular SOFCs cell and stack were studied. For this purpose, we first developed a high performance tubular SOFC cell, and then made electrical connection in series to get high voltage. The gas sealing was established by attaching single cells to alumina jig with ceramic bond. Through these process, we can obtain such high OVP as around 15V, which means that the electrical connection and gas sealing were optimized. Finally we developed a new tubular SOFC stack which shows a maximum power of 65W @ 800°C.

**Key words** : Solid Oxide Fuel Cell(고체산화물 연료전지), Tubular SOFCs(원통형 고체산화물 연료전지), Anode-Support(연료극 지지체), Stack(스택)

### 1. 서 론

고체산화물 연료전지(SOFC, solid oxide fuel cell)는 고체 세라믹을 전해질로 사용하여 600°C~1000°C의 고온에서 전기화학반응에 의해 전기를 생산하는 장치로서, 현존하는 연료전지 발전 기술 중 발전 효율이 가장 높고 경제성이 우수한 장점이 있다<sup>1-3)</sup>. 이러한 SOFC의 스택(stack)을 구성하는 단위 전지는 형태에 따라 원통형(tubular type)과 평판형(planar type)으로 나뉘어 기술 개발이 진행되어 왔다<sup>4)</sup>. 평판형 SOFC

는 높은 전류밀도와 제조비용이 낮지만, 별도의 밀봉이 요구되고, 열 사이클에 대한 저항성이 낮아 신뢰성이 부족하다는 단점이 있다. 원통형 SOFC는 기체 밀봉이 최소화되었고, 상용화에 가장 근접한 SOFC 디자인으로 평가받고 있다<sup>5)</sup>.

본 연구에서는 원통형 고체산화물 연료전지의 제조공정을 최적화하고 단위전지만으로는 충분한 전압을 얻을 수 없기 때문에 고전압, 고출력을 갖는 스택 제작 연구를 수행하였다. 주원료인 NiO-YSZ(Nickel Oxide-Yttria stabilized ZrO<sub>2</sub>)를 사용하여 직경 10mm인 원통형 연료극 지지체를 압출법으로 제조하였고 이렇게 제조한 원통형 SOFC 단위전지들을 직렬로 연결하여 스택을 제작하였다. 또한, 스택의 성능을

<sup>†</sup>Corresponding author : sblee@kier.re.kr

[ 접수일 : 2013.10.23 수정일 : 2013.11.15 게재확정일 : 2013.12.31 ]

Copyright © 2013 KHNES

높이기 위한 연구를 수행하였다.

## 2. 실험방법

### 2.1 원통형 연료극 지지체 제조

고체산화물 연료전지에 사용되는 연료극 분말을 제조하기 위해 NiO와 8mol% Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-stabilized-ZrO<sub>2</sub>(8YSZ) 분말을 이용하여 40 vol.% Ni이 되도록 NiO와 YSZ (Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-stabilized-ZrO<sub>2</sub>)를 정량하였으며 다공성 연료극 시편을 제조하기 위해 기공형성제인 카본블랙(carbon black)을 5 wt.% 혼합하였다. 혼합된 분말을 지르코니아 볼과 함께 에탄올을 첨가하여 2주 동안 볼 밀링(ball-milling)을 하였다. 그 후 건조기에서 건조 후 시빙기(sieving machine)로 스크리닝(screening)하여 연료극 분말을 제조하였다. 제조된 혼합분말에 증류수와 유기바인더(organic binder), 가소제(plasticizer), 윤활제(lubricant) 등을 첨가하여 혼련(kneading)을 한 후 압출 성형(extrusion)하여 직경 10mm, 두께 1mm의 지지체를 제작하였다<sup>6)</sup>.

압출된 성형체는 균일한 건조를 위하여 70rpm의 속도로 rolling 건조하였으며, 건조된 지지체는 1100 °C에서 3시간 동안 가소결(pre-sintering)하여 기공형성제와 첨가물을 제거하였다.

### 2.2 원통형 SOFC 단위전지 집전

제조한 원통형 SOFC 단위전지를 Fig. 2와 같이 공기극에 실버 메쉬를 대고 실버 도선(직경 0.5mm)을 감아서 고정시킨 후 LSCo를 도포하여 집전한다. 연료극 집전은 Fig. 3과 같이 니켈 펠트에 니켈 도선(직경 1mm)을 용접하여 집전체를 만든 후에 집전체 표면에 전도성 페이스트를 도포한 다음 단위전지 내부에 말아서 넣는다. 그리고 성능평가 시 전류인가를 위한 전류선과 전압측정을 위한 전압선은 각각 단위전지 끝단에 연결하였다.



Fig. 1 Tubular SOFC



Fig. 2 Cathode current collecting of tubular SOFCs

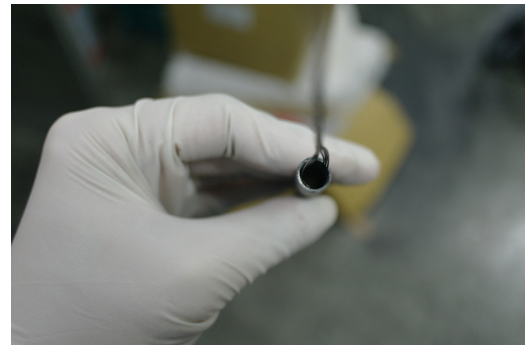


Fig. 3 Anode current collecting of tubular SOFCs

### 2.3 스택 구조 및 연료공급 매니폴드 설계

스택 제작에 중요한 요소에는 스택성능에 가장 큰 영향을 미치는 단위전지가 있고 가스리크를 최소화하는 밀봉기술, 스택 구조 및 연료공급 매니폴드 등이 있다. 단위전지의 경우 앞서 기술한 것처럼 최적

화된 제조공정을 통해 원통형 SOFC 단위전지를 제조하였다. 그 다음으로는 스택의 구조 및 연료공급 매니폴드의 디자인에 관한 연구가 진행되어야 하는데 스택구조의 경우 밀봉과 제작이 용이한 사각형태의 구조로 디자인 하였고 절연과 밀봉의 용이성을 더하기 위해 Fig. 4와 같이 플레이트 형태로 세라믹 소재의 고정 지그를 제작하였다. 그리고 연료공급 매니폴드는 고온에서 내구성이 우수한 sus계열 소재를 사용하여 Fig. 5에서 보듯이 안이 비어있는 박스 형태로 제작하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 원통형 SOFC 스택 제작

최적화된 제조공정을 통해 원통형 SOFC 단위전

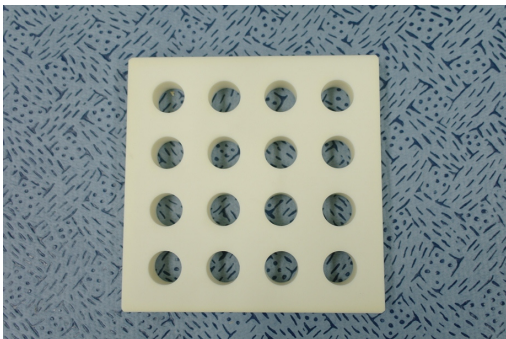


Fig. 4 Ceramic Zig

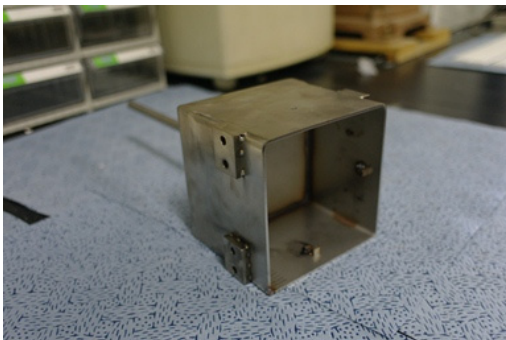


Fig. 5 Fuel supply manifold

지를 제조하고 제조된 단위전지의 연료극과 공기극을 집전하였다(Fig. 6. b). 집전이 완료된 단위전지들을 세라믹 지그에 접합하게 되는데 이 때 세라믹 지그(Fig. 6. a)에 뚫려있는 구멍을 통해 단위전지와 집전선들이 같이 들어가게 되고 ceramabond(Aremco Co.)로 접합을 하게 된다(Fig. 6. c). ceramabond를 도포 후에 건조과정을 거친다. 완전히 건조 후에 각 단위전지들의 도선을 직접 연결하는 방식으로 단위전지들을 전기적으로 연결한다. 이렇게 도선을 직접 연결하는 방식은 다른 금속 연결재를 이용하여 연결하는 방식보다 저항을 줄일 수 있다는 장점이 있다. 도선을 연결한 후에 접촉저항을 줄이기 위해 전도성 페이스트를 도포하였고 마지막으로 연료공급 매니폴드와 세라믹 지그를 ceramabond를 이용하여 체결하였다. 그리고 본 스택의 경우 단위전지들의 양쪽에 금속재질의 매니폴드가 접합되어 있는 디자인으로 양쪽이 정확히 대칭이 아니면 단위전지에 응력이 생기면서 단위전지가 파손되었다. 그래서 단위전지에 가해지는 응력을 최소화 하기 위해 양쪽 매니폴드를 지지하고 이어주는 금속바를 설치하여 스택의 안정성을 높여 주었다(Fig. 6. d).

#### 3.2 스택 성능평가

Fig. 6과 같이 제작이 완료된 스택을 평가로에 설

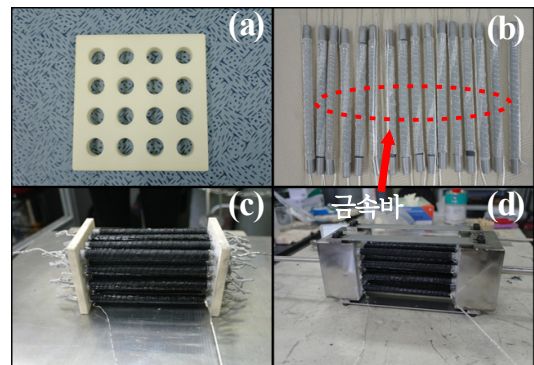


Fig. 6 Fabrication process of tubular SOFC stack

치하고 성능평가를 실시하였다. 스택의 아래쪽에 에어챔버를 설치하여 공기극에 공기를 공급하였다. Fig. 7은 원통형 SOFC 스택에서 연료 유량별 반응온도에 따른 성능 측정 결과(a: 750°C, b: 800°C)를 나타내었고 Fig. 8은 동일한 온도에서 연료 유량에 따른 성능측정결과를 나타낸 그래프이다.

스택의 운전조건으로는 산화제로서 2L/min의 공기를 공급해주었고 연료로서 수소를 1500, 2000, 2500, 3000cc/min으로 변화시켜 공급했으며, 3%의 수분이 연료에 주입되었다. 이러한 조건으로 운전한 결과 750°C에서 스택의 최대 출력은 43, 50, 64, 65W가 측정되었고 800°C에서 최대 출력은 58, 64, 67, 68W가 측정되었다. 수소의 유량이 감소할수록 성능이 감소하는 것을 알 수 있는데 이것은 촉매층에서의 반응물 농도가 유로 농도에 비해 상대적으로 감소하고 생성물의 농도가 유로 농도에 비해 상대적으로 증가하기 때문에 물질 전달의 반응 손실을 가져오게 된다<sup>7)</sup>. 또한, 물질 전달이 감소하게 되면서 수소가 촉매와 전해질 사이에 원활히 접촉하지 못하여 단위전지의 과전압을 높지게 되어 성능을 감소하는 현상이 나타나는 것으로 사료된다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 최적화된 제조공정을 통해 직경 10mm 원통형 SOFC 단위전지를 제조하고 단위전지 만으로는 충분한 전압을 얻을 수 없기 때문에 고전압, 고출력을 갖는 스택제작에 관한 연구를 수행하였다. 원통형 SOFC 단위전지들을 직렬로 연결하여 고전압화가 가능하고 직렬로 연결된 단위전지들을 세라믹 재질로 형성된 고정지지대에 고정함으로써 절연과 가스밀봉이 용이하도록 하였다. 또한, 각각의 단위전지들을 도전체로 직접 연결함으로써 접촉저항을 줄일 수 있으며 단위전지들의 접촉으로 인한 쇼트를 방지하고 각각의 단위전지들이 받는 응력을 최소화

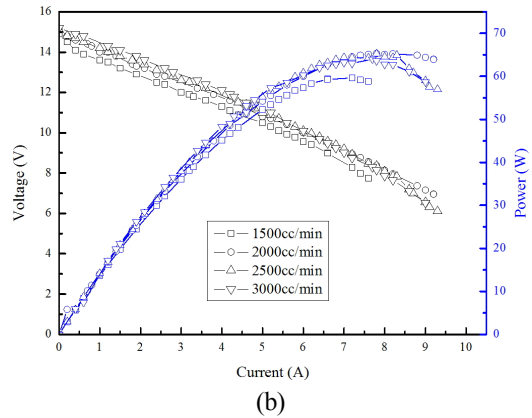
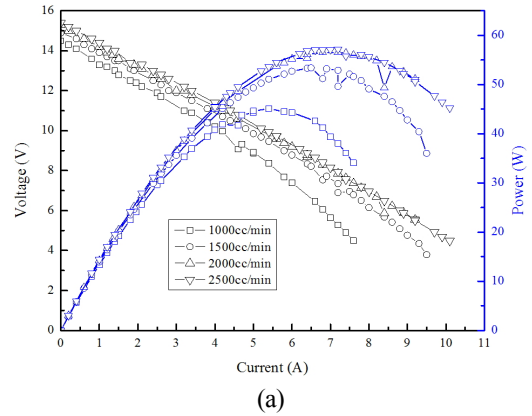


Fig. 7 Performance of tubular SOFCs stack with different fuel flow (a: 750°C, b: 800°C)

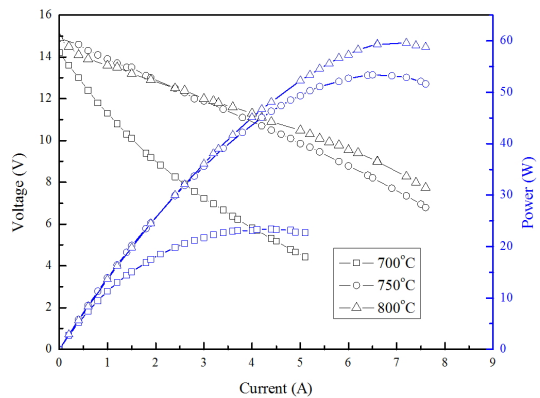


Fig. 8 Performance of tubular SOFCs stack with different temperature

하여 스택운전 시 단위전지들이 파괴되거나 성능이 저하되는 것을 방지할 수 있도록 하였다.

평가로에 에어챔버를 설치하여 공기극에 공기를

공급하도록 하였고 1.7°C/min 속도로 승온 시킨 후 수소의 유량을 1500, 2000, 2500, 3000cc/min으로 변화시켜 성능을 측정하였다. 750°C에서 스택의 최대 출력은 수소의 유량에 따라 각각 43, 50, 64, 65W로 측정되었고 800°C에서는 최대 출력이 수소의 유량에 따라 각각 58, 64, 67, 68W로 측정되었다. 이것은 촉매층에서의 반응물 농도가 유로 농도에 비해 상대적으로 감소하고 생성물의 농도가 유로 농도에 비해 상대적으로 증가하기 때문에 물질 전달의 반응 손실을 가져오게 된다. 또한, 물질 전달이 감소하게 되면서 수소가 촉매와 전해질 사이에 원활히 접촉하지 못하여 단위전지의 과전압을 높이게 되어 성능을 감소하는 현상이 나타나는 것으로 사료된다.

## 후 기

본 연구는 민군기술협력진흥센터 ‘250W 군용 SOFC 전원개발’ 과제와 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제(20113020030050)입니다.

## References

1. G. A. Tompsett, C. Finnerty, K. Kendall, T. Alston and N. M. Sammes, “Novel applications for micro SOFCs”, *J. Power Sources*, Vol. 86, p. 376(2000).
2. S. C. Singhal, “Solid oxide fuel cells for stationary, mobile, and military applications”, *Solid State Ionics*, Vol. 152, p. 405(2002).
3. J. Wang, Z. Lü, X. Huang, K. Chena, N. Ai, J. Hua and W. su, “YSZ films fabricated by a spin smoothing technique and its application in solid oxide fuel cell”, *J. Power Sources*, Vol. 163, p. 957(2007).
4. N. M. Sammes, Y. Du and R. Bove, “Design and fabrication of a 100W anode supported micro-tubular SOFC stack”, *J. Power Sources*, Vol. 145, p. 428 (2005).
5. F. J. Gardner, M. J. Day, N. P. Brandon, M. N. Pashley and M. Cassidy, “SOFC technology development at Rolls-Royce”, *J. Power Sources*, Vol. 86, p. 122(2000).
6. W. J. Kim, “Fabrication and Characterization of Anode-Supported Flat-Tube Solid Oxide Fuel Cell with Interconnect Coating Layer”, 2011
7. R. O'Hayre, S. W. Cha, W. Colella, and F. B. Prinz, “Fuel Cell Fundamentals”, John Wiley & Sons, New york, p. 161-194(2009).
1. G. A. Tompsett, C. Finnerty, K. Kendall, T.