1 고온수전해 수소 제조 연구 동향
(수소경제 사회 실현을 위한 지속 가능한 수소 제조 기술)

글_김선동 책임연구원 | 한국에너지기술연구원 에너지소재연구실

1. 서론

인류는 생존과 번영을 위해 에너지를 사용해 왔으며 자연으로부터 에너지원을 채취-가공-활용하는 기술을 꾸준히 발전시켜 왔다. 1700년대 이전에는 주로 목재를 땔감으로 이용하여 열에너지원으로 활용하기도 하였으나 18세기 접어들면서 연소 효율이 높은 석탄을 이용하게 되었고, 이후 석유를 채굴하고 활용하게 되면서 목재는 주요 에너지원으로서 자연스럽게 도퇴 되었다. 제1차 세계대전 이후 중동지역을 중심으로 대규모 유전이 계속 개발되면서 주요 에너지원은 석유로 전환되었고 가스 산업의 부흥 및 석유화학 기술의 발달과 함께 주요 에너지원은 석탄에서 석유, 또한 석유에서 천연가스로 변화하게 되었다. 이러한 변천사를 좀더 자세히 들여다보면 인류가 그간 활용한 다양한 에너지원은 탄소와 수소의 복합체(hydrocarbon, CxHy)를 기본 구조로 구성되어 있음을 알 수 있으며, 목재-석탄-석유-천연가스와 같이 연소 효율이 높아질수록 에너지원을 구성하는 물질 내의 수소 농도가 계속 높아지고 있는 것을 알 수 있다. 이를 두고 국제수소학회(IAHE)의 의장인 Dr. T. Nejat Veziroglu는 미래 사회는 궁극적으로 순수한 수소를 주 에너지원으로 사용할 것임을 예측하기도 하였다 [1]. 이러한 수소에너지는 최근 고유가 및 기후변화에 따른 온난화가 가속되고 있는 현 상황에서 환경 및 에너지 문제의 동시 해결을 위한 유력한 대안으로서 가까운 미래에 수소에너지의 제조 · 저장 · 활용 기술의 성장과 함께

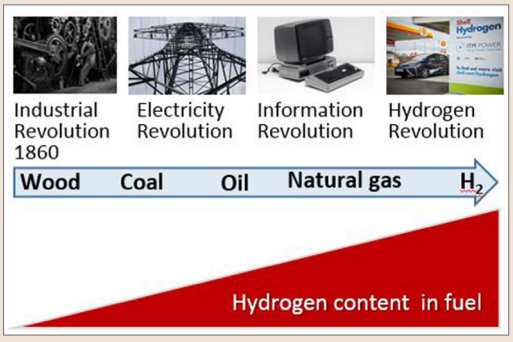

그림 1 ▸ Change in hydrogen concentration between fuels with technical progress.

본격적으로 수소경제 사회가 도래할 것이라는 다양한 전망들이 제시되고 있다. 이렇듯 수소에너지 관련 원천기술의 확보는 21세기 국가 경쟁력을 결정하는 중요한 요소가 되고 있다 [2-4].

수소를 제조하는 방법은 크게 천연가스(natural gas) 또는 나프타(naphtha) 등 지하 자원인 휘발성 탄화수소를 개질하는 방법과 물을 전기분해하여 제조하는 방법으로 구분할 수 있으며, 현재 생산 및 유통되고 있는 대부분의 수소는 개질을 통한 석유화학 공정을 기반으로 하고 있다. 이러한 기술에 의존할 수밖에 없는 이유는 석유화학 공정을 통해 수소를 제조하는 비용이 상대적으로 저렴하며, 이미 기술적으로 성숙하여 대량 수소를 제조하기에 적합하기 때문이다. 그러나 이러한 공정은 수소의 제조 과정에서 CO_2 등 다량의 온실가스 배출에 의한 환경 오염이 문제점으로 지적되고 있으며, 에너지수급 불안정 및 부존 자원에 대한 의존성 문제에서 자유로울 수 없다는 근본적인 한계가 있다. 따라서 한정된 자원에 대한 구속이 없으며 환경 친화적인 방법으로 수소를 제조하는 기술에 대한 필요성이 끊임없이 제기되고 있다 [5].

이 가운데 물을 전기분해하여 수소를 제조하는 기술은 상대적으로 무한한 자원인 물을 이용하여 공해 물질의 배출 없이 대량의 수소를 제조할 수 있다는 장점이 있다. 최근 전 세계적으로 신재생에너지를 이용한 발전 비중을 높여가고 있는 현 시점에서 전기에너지를 수소로 전환하여 대용량으로 장기간 저장하고자 하는 기술적 수요와 함께 물을 전기분해하여 수소로 전환하는 기술이 주목 받고 있다. 물의 전기분해에 필요한 전기에너지는 태양 및 바람 에너지 등 자연으로부터 얻고자 하는 다양한 방법이 구상되고 있으며, 경제적인 측면에서 최소한의 전기에너지를 이용하여 다량의 수소를 제조하는 기술이 핵심적인 이슈로 부각되고 있다.

2. 본론

2.1 고온수전해 기본 원리

고온수전해 방식은 고체산화물 연료전지와 전기분해의 융합기술이며 구조와 작동원리는 아래 그림과 같다. 연료전지가 수소와 공기 중 산소를 소비하면서 물과 전기를 생산하는 발전반응에 기초한다면, 고온수전해 반응은 이와는 반대로 수증기 주입 후 전기에너지를

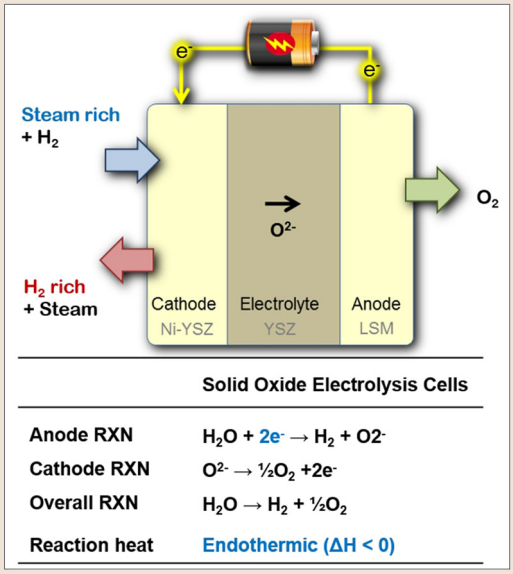

그림 2 ▸ Principle of high-temperature electrolysis by solid oxide electrolysis cell.

인가하여 전기화학적인 분해반응(H_2O + energy → H_2O + 1/2O_2)에 의해 물이 수소와 산소로 분리되는 공정을 기반으로 하고 있다.

고온수전해는 700~850℃ 정도의 과열 증기를 전기분해하여 기존 60~85℃에서 작동하는 저온수전해 공정에 비하여 20~30% 정도의 전기에너지 절감할 수 있다는 장점이 있다. 이는 그림 3의 물분해 과정에서 소요되는 에너지를 표시한 열역학적 그래프에서 확인할 수 있는 바와 같이 물의 끓는 점인 100℃를 기준으로 에너지 소모량(ΔH_R^o)이 급격히 낮아지고 이후 수증기의 온도(ΔS_R^o)가 증가함에 따라 필요한 전기에너지(ΔG_R^o) 소모량이 낮아지기 때문이다. 전기에너지를 소모하여 제조하는 수소는 궁극적으로 수소 또는 전기의 형태로 재사용 될 것이기 때문에 가역 전환 효율(round trip efficiency)가 높아야 하고 이를 위해서는 전기에너지 소모량이 매우 낮아야 한다. 따라서 경제성 확보를 위하여 전기분해에 소요되는 전기에너지를 태양광 또는 풍력 등 신재생에너지로부터 발생하는 심야의 저렴한 전기를 이용하는 방안 등이 고려되고 있고, 다양한 수소 제조 기술과의 경쟁 구도에서 전기분해에 필요한 전기에너지 소모량을 최소화할 수 있는 고온형 수전해 기술이 대량 수소 제조를 위한 미래 기술로서 가장 적합한 것으로 평가되고 있다.

물의 전기분해에 전기화학 반응에 수반되는 반응열(reaction heat flux)는 연료전지와 반대로 흡열반응(ΔH<0)에 기초하고 있다. 시스템에서 발열반응(ΔH>0)이 일어날 경우 다량의 전기에너지가 열에너지로 소모되기 때문에 효율이 낮아지는 반면 자발적인 생성열에 의해 반응이 지속될 수 있다는 장점이 있다. 한편, 고온수전해 시스템에서 발생하는 열적 흐름은 그림 4에서와 같이 Ohmic heat flux (ΔH>0) 및 Reaction heat flux (ΔH<0) 와 같은 다양한 열에너지의 조합에 따라 평형을 이루는 지점(thermal neutral voltage)이 존재하여 시스템의 전기에너지가 열에너지로 방출되지 않아 상대적으로 효율이 매우 높다는 장점이 있다. 그러나 자발적인 생성열에 의해 반응이

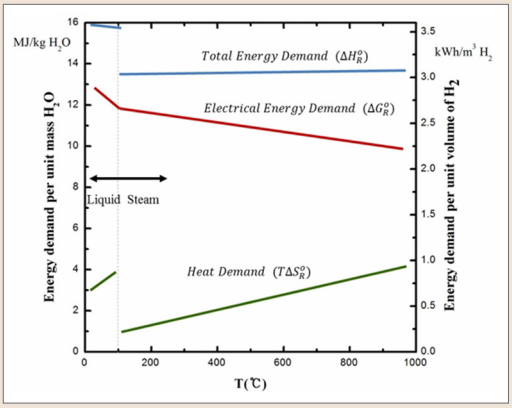

그림 3 ▸ Energy necessary for high-temperature electrolysis from a thermodynamic point of view.

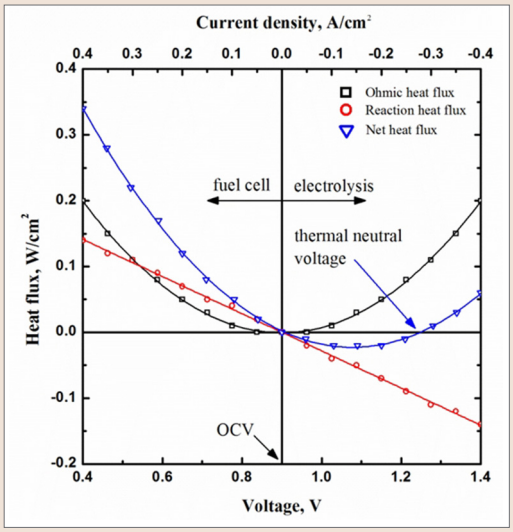

그림 4 ▸ Heat flux in fuel cell and electrolysis operation mode.

지속되는 연료전지와는 달리 수전해 반응은 작동 환경을 유지하기 위하여 지속적인 열 및 전기에너지의 공급을 요구하고 있으며 국가별 전략으로 원자력발전(북미, 중국), 태양열(독일 등 유럽) 또는 폐기물에너지(대한민국) 등으로부터 필요한 열에너지원을 공급받는 시스템이 구상되고 있다.

2.2 고온수전해 연구 동향

주요 에너지 선진국에서는 신재생에너지를 이용한 수소제조(renewable electrolysis) 기술 등 환경 친화적인 기술력 확보를 추구하고 있으며 차세대 에너지 시장을 선점하기 위한 국가주도형 기술개발을 추진하고 있다. 시스템의 상용화를 목전에 두고 있는 만큼 대학의 기초연구 보다는 연구기관 또는 기업 주도의 개발이 이루어지고 있으며 유럽의 경우 국가간 협력사업으로 연구 개발이 이루어지고 있다.

미국의 경우 2005년부터 DOE Nuclear Hdyrogenn Initiative (NHI) 프로그램을 통해 4세대 고온원자로 시스템과 연계된 열화학적 방법 및 고온수전해 방법을 통한 수소제조 기술에 대한 타당성 검증을 실시해 왔다 [6,7]. 2009년 말에는 NHI 프로그램이 종료된 뒤 Next Generation Nuclear Plant (NGNP)을 통해 고온수전해 수소 제조방식을 통해 대량 수소를 제조하는 연구가 계속 진행되어 왔다. 이와 같이 미국은 Nuclear thermal energy를 고온스팀 제조에 활용하는 컨셉을 연구해 왔으며 Idaho National Lab. (INL) 및 Fuelcell Energy 社에서 중점적으로 연구 개발을 추진중이다. 이 가운데 INL은 고온수전해 연구를 주도적

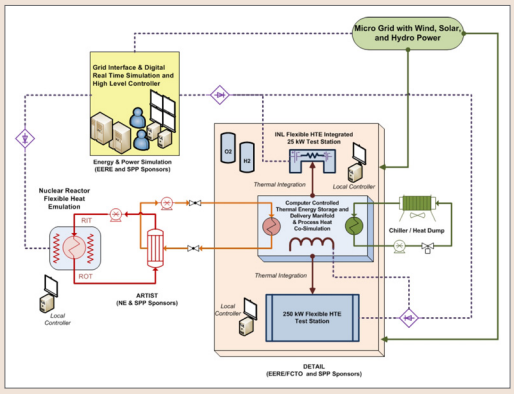

그림 5 ▸ Dynamic Energy Transport and Integration Laboratory (DETAIL) within the INL Energy Systems Laboratory.

으로 수행해 온 대표 연구기관으로 NREL, PNNL, SNL과 같은 National Lab과 파트너로서 연구를 추진하고 있다. NREL은 Power converer와 front-end controller intergration 기술, PNNL은 고온수전해 스택 디자인, SNL은 front-end controller 개발과 그리드(grid) 상호작용에 관한 시험평가 등을 실시하고 있다. 25 kW 급 multi stack을 기반으로 250 kW 급 시스템 플랫폼을 구성하여 다이나믹한 구동 환경에서 작동 및 평가가 이루어질 수 있도록 DETAIL 시스템 (dynamic energy transport and integration laboratory)이라 명명된 평가 체계를 구축하여 Grid-dynamic 환경에서 시험평가를 실시하고 있다.

Fuelcell Energy 社 는 VPS (Versa Power Systems 社)의 셀 소재/공정 기술 및 NETL의 stack scale up, power system integration 기술을 기반으로 연구 개발을 추진 중이며 수소 제조 비용으로 $2/kg (delivery, compression, storage 및 dispensing 제외) 이하로 제조하는 것을 목표로 연구 중이다 [8-10]. 현재 달성한 연구의 수준은 5 cm × 5 cm × 0.03 cm 규격의 단위셀

(Ni-YSZ/YSZ/LSCF)을 이용하여 전류밀도 1.0 및 2.0 A/cm² 에서 각각 1.3 및 3.5 %/1,000 h의 열화율을 확인한 바 있다. 또한 에너지 저장기술의 일환으로 Reversible SOFC (RSOFC) 연구를 추진하고 있으며 200kW 급 시스템 5모듈을(1 MW) 기반으로 6 h 방전 가능한 6 MWh 급 RSOFC 시스템에 대한 개발 계획을 선보이기도 하였다.

이 밖에도 LBNL, NREL, LLNL, SNL, SRNL 등 국책 연구기관이 HydroGEN 컨소시엄을 구성하여 금속지지체 및 프로톤 전도성 세라믹 전해질을 이용한 새로운 컨셉의 고온수전해 기술에 대하여 연구개발을 추진하고 있다 [11]. 이와 같은 고온수전해 연구 동향을 종합 해 볼 때, 미국은 National Lab의 기술력 및 설비를 중심으로 대학과 기업체가 협력하는 방식으로 고온 수전해 연구가 추진 중인 것을 알 수 있다.

유럽의 고온수전해 연구는 2002년~2006년 추진된 European Hi2H2 컨소시엄을 시작으로 CEA(프랑스), DTU-RISO(덴마크), ECN(네델란드), EIFER(독일), Helion(프랑스), Imperial College(영국), EMPA(스위스), DLR(독일) 및 Topsoe(덴마크) 등이 참여한 RelHy (Innovative Solid Oxide Electrolyser Stack for Efficient and Reliable Hydrogen Production, 2007년~2013년) 컨소시엄을 통해 본격적으로 추진되었다. 2008년부터 Fuel Cells and Hydrogen Joint Undsertaking (FCH JU) 파트너쉽을 통해 유럽 전 국가에 걸쳐 진행되는 통합 과학 기술 연구 예산인 Framework Programme for Research (FP 6 and 7) 및 Horizon 2020 (2014년~2020년)을 기반으로 현재까지 유럽 공동 프로젝트로 추진되고 있다 [12,13].

이 가운데, 덴마크 기업인 Haldor Topsoe 에서는 고체산화물연료전지 기술을 기반으로 전해질 및 전극 지지형 셀 개발을 추진해 왔으며 금속지지형 셀을 이용한 스택 개발을 통해 약 600℃의 온도에서 구동이 가능한 고온수전해 수소 제조기술을 개발하고 있다. 스택의 강건성 및 양산성을 보완한 설계를 통해 기술적 완성도를 향상시키고 있다 [14]. 최근에는 DTU (Technical University of Denmark) 와 함께 CO_2 전해 또는 CO_2 + H_2O 공전해를 통해 99.995% 이상 고순도의 CO 기반 합성가스를 제조하는 전해 기술에 대해서도 상용화 수준의 연구개발이 진행되고 있다.

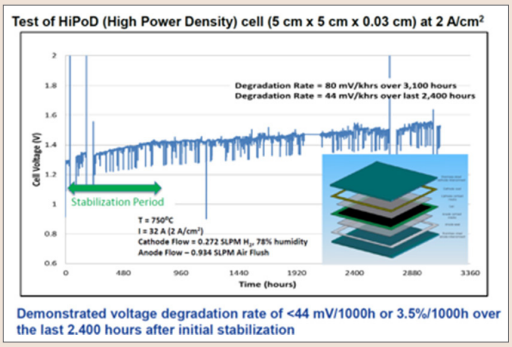

그림 6 ▸ Voltage degradation of high power density (HiPoD) cells tested with Fuelcell energy.

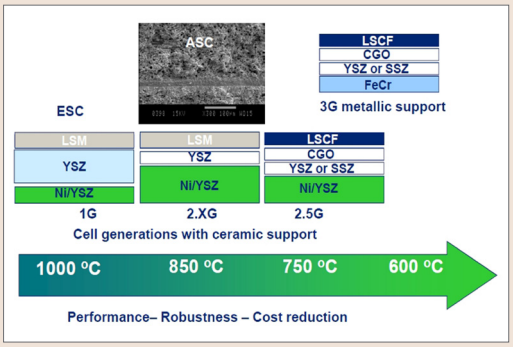

그림 7 ▸ Transition of SOE cell structure in Topsoe considering performance, durability and economy.

독일 Webasto AG와 H.C.Starck GmbH의 조인트 벤쳐기업으로 설립된 Sunfire 社에서는 2011년 SOFC 소재 및 셀 개발 업체인 Staxera 社를 인수하면서 본격적으로 연료전지 시스템 개발을 추진해 왔으며, 최근에는 가역 SOFC-SOEC 시스템인 RSOC (reversible solid oxide cell) 시스템 개발이 진행되고 있다. 그림 8과 같이 신재생에너지로부터 생성된 전기에너지를 저장 및 활용하기 위한 컨셉으로 2 모듈로 구성된 2×80 kW SOEC 및 2×20 kW SOFC 가역 스택 시스템을 운용하고 있으며 가역운전효율(roundtrip efficiency)은 45%에 달하는 것으로 알려져 있다. 현재까지 보고되고 있는 RSOC 시스템 연구 중에서 가장 완성도가 높은 기술을 선보이고 있으며 BOEING 社와 공동으로 실증운전 중에 있다 [15,16].

이와 유사한 컨셉으로 핀란드 국책연구기관인 VTT Technical Research Centre에서는 유럽의 BALANCE project 참여 파트너로서 ReSOC (reversible solid oxide cell) 시스템 개발을 추진하고 있다 [17]. 풍력 및 태양광 등 신재생에너지 활용도가 높은 유럽 국가를 중심으로 전력수요 및 공급의 불균형을 해소하기 위한 방안으로 수소에너지를 에너지 저장의 수단으로 활용하고자 하는 아이디어를 확인할 수 있다 [18].

중국은 Nuclear process heat을 이용한 고온스팀 제조 및 전기분해를 통한 수소 제조 기술에 대한 개발을 추진중에 있다. 1990년대부터 칭와대학교(Tsinghua Univ.) 산하 연구소인 Institute of Nuclear and New Energy Technology (INET)를 중심으로 원자력 수소개발을 추진하고 있다. 수소 생산용 고온가스 실험로인 HTR-10을 완공하였으며 HTR-PM 및 HTR-X를 추가적으로 건설 예정에 있다. 또한 수소생산을 위한 SI 공정의 4단계 로드맵과 고온수전해 5단계 로드맵을 수립하여 고온수전해 실현 가능성을 확인하였고 현재 60 L/hr 수준의 스택 개발을 추진하고 있다. 최근 발표한 5×20cm²(5 cell) 스택의 성능은 개회로전압(OCV) 5.66 V 이고 0.8 A 및 2.53 A에서 각각 1.67 L/h 및 5.21 L/h 의 수소 생산능력을 갖추고 있는 것으로 확인되고 있다 [19,20].

국내 고온수전해 연구는 2003년~2013년에 걸쳐 진행된 21세기프론티어사업(고효율 수소에너지 제조 · 저장 · 이용 기술 개발사업)을 통해 본격적으로 시작되었다. 한국에너지기술

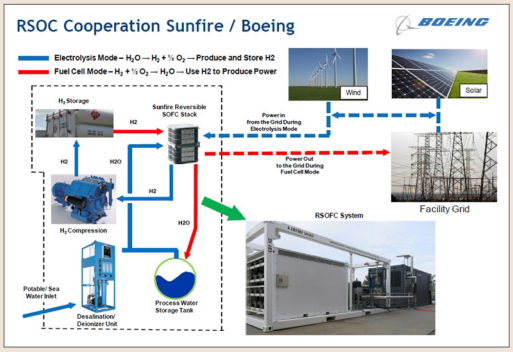

그림 8 ▸ Schematic of Sunfire and Boeing's reversible solid oxide cell cooperation.

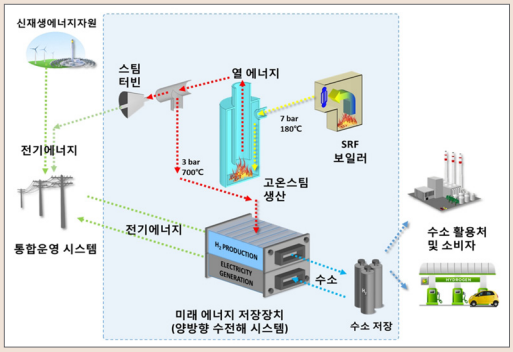

그림 9 ▸ Schematic of reversible hydrogen production and utilization technology using renewable hybrids.

연구원에서 무공해 청정 수소에너지 생산기술을 목표로 평관형 고체산화물스택을 이용한 고온수전해 수소제조 기술을 확보하였다 [21,22]. 최근에는 2016년~2023년에 걸쳐 과기부 · 환경부 · 산업부가 공동으로 참여하여 신재생에너지(폐기물에너지)와 연계하여 고온 · 고압의 폐열을 활용하는 것을 목표로 한국에너지기술연구원을 중심으로 가역 연료전지-수전해 시스템 개발이 추진중이다 [23].

3. 맺음말

수소는 첨단 산업의 기초 소재로 대량 수요처인 반도체, 태양전지, LED 산업 등의 성장세가 당분간 이어질 것으로 전망되고 있으며, 미래 수송시장을 책임질 연료전지 차량의 폭발적 증가와 함께 지속적인 수요 확대가 예상되고 있다. 수소를 제조하는 다양한 기술 가운데 고온수전해 기술은 고온의 수증기를 전기분해하여 수소를 직접 생산하는 방식으로 환경 및 자원에 대한 의존성을 고려하여 지속가능한 대량 수소 제조 공정으로서 가장 적합한 기술로 평가되고 있다. 특히, 다양한 에너지포트폴리오 중에서 신재생에너지에 대한 의존도를 높여가는 전 세계적인 추세 속에서 수요-공급 불균형을 해소하기 위하여 수소에너지를 대용량 에너지저장 매체로 이용하는 것이 유력한 대안으로 고려되고 있으며, 가역 수전해-연료전지 시스템을 통해 저장된 수소를 다시 전기에너지로 전환하는 스마트 시스템에 대한 연구도 활발하게 이루어지고 있다. 이러한 기술이 상용화 되기 위해서는 다소 시간이 소요될 것으로 판단되나 미래 에너지기술로서 고온수전해 수소제조 기술은 청정 수소를 대량으로 제조하는 가장 효율적인 방법이기 때문에 전략적으로 꾸준히 연구해야 할 필요성이 있다. 자원이 절대적으로 부족한 국내 실정에서 미래 에너지 강국으로 거듭나기 위해서는 수소에너지에 대한 절대적인 투자가 필요하며 이러한 과정을 통해 기술 경쟁력을 갖추어서 수소경제 사회가 도래하였을 때 에너지 자립할 수 있는 대한민국이 되기를 기원해본다.

참 / 고 / 문 / 헌

[1] T. N. Veziroglu and F. Barbir, Hydrogen Energy Technologies, UNIDO Emerging Technologies Series, UNIDO (Vinna, 1998).

[2] K. Urbaniec, A. Fridl, D. Huisingh, and P. Claassen, J. Clean. Prod., 18, S1-S3 (2010).

[3] G. Marban and T. Caldes-Solis, Int. J. Hydrogen, Energ., 32, 1625-1637 (2007).

[4] J. Andrews and B. Shabani, Int. J. Hydrogen Energ., 37, 1184-1203 (2012).

[5] B. Yu and J. Xu, High Temperature Electrolysis in Large-Scale Hydrogen Production, Nova Science Publishers, Inc. (New York, 2010).

[6] J. O'Brien, High Temperature Electrolysis Test Stand, https://www.google.co.kr/search?q=doe+high+temperature+electrolysis&source=lnt&tbs=qdr:y&sa=X&ved=0ahUKEwiCw_fssp7dAhUM_GEKHaeRDiMQpwUIHg&biw=1902&bih=1424 (2018).

[7] C. M. Stoots et al., Int. J. Hydrogen Energ., 34, 4028-4037 (2012).

[8] H. Ghezel-Ayagh, 2017 DOE Hydrogen and Fuel Cells Programn Review (2017) p. 3.

[9] E. Tang, T. Wood, C Brown, and R Petri, 2015 DOE Hydrogen Program Review (2015) p. 9-11.

[10] S. Curtin and J. Gangi, U.S. DOE Fuel Cell Technologies Market Report (2016) p. 35.

[11] R. Boardman, H, Dinh, and A Weber, 2018 Annual Merit Review (DC, 2018).

[12] M. Andersson and B. Sunden, Technology review solid oxide fuel cell, Swedish Electromobility Center, ENERGIFORSK, (2017).

[13] Fuel Cells and Hydrogen Joint Undertaking, http://www.fch.europa.eu/page/fp7-projects-application-area (2018).

[14] R. Kungas, P. Blennow, T. heiredal-Clausen, T. H. Norby, J. Rass-Hansen, J. B. Hansen, and P. G. Moges, Proc. 13th European SOFC & SOE Forum 2018 (Lucerne, Swiss 2018).

[15] J. Mermelstein and O. Posdziech, Fuel Cells 17, 562-570 (2017).

[16] K. Schwarze, O. Posdziech, S. Kroop, and N. Sapena-Ray, J. Mermelstein, ECS TRans., 78, 2943-2952 (2017).

[17] J. Tallgren, O. Himanen, and M. Noponen, ECS Trans., 78, 3103-3111 (2017).

[18] A. Mehmeti, A. Angelis-Dimakis, C. B. Munoz, M. Graziadio, and S. J. McPhail, J. Clean. Prod., 199, 723-736 (2018).

[19] Y. Zheng, B. Yu, W. Shang, J. Chen, J. Qiao, and J. Zhang, Chem. Soc. Rev., 36, 1427-1463 (2017).

[20] W. Zhang, Y. Zheng, B. Yu, J. Wang, and J. Chen, INt. J. Hydrogen Energ., 42, 29911-29920 (2017).

[21] S. D. Kim, J. H. Yu, D. W. Seo, I. S. Han, and S. K. Woo, Int. J. Hydrogen Energ., 37, 78-83 (2012).

[22] S. D. Kim, D. W. Seo, A. K. Dorai, and S. K. Woo, Int. J. Hydrogen Energ., 38, 6569-6576 (2013).

[23] 이주영, 월간수소경제, 대용량 에너지 저장, 수소가 답이다-국내 수소저장기술의 현주소, 어디쯤일까, http://www.h2news.kr/news/article.html?no=6139.

저 / 자 / 약 / 력

성명 김선동

학력
2002년 연세대학교 세라믹공학과 공학사
2007년 연세대학교 신소재공학부 공학박사

경력
2007년 - 2010년 현대자동차 책임연구원
2010년 - 현재 한국에너지기술연구원 책임연구원