

1.5 kW급 용융탄산염 연료전지 스택의 성능 분석

남석우 · 황정태* · 이갑수 · 임태훈 · 오인환 · 하홍용 · 윤성필 · 홍성안 · 임희천**

한국과학기술연구원 전지 연료전지 연구센터,

*삼성중공업, **한전 전력연구원

Performance Analysis of 1.5 kW-class Molten Carbonate Fuel Cell Stack

Suk-Woo Nam, Jung-Tae Hwang*, Kab-Soo Lee, Tae-Hoon Lim, In-Hwan Oh,
Heung-Yong Ha, Sung-Pil Yoon, Seong-Ahn Hong and Hee-Chun Lim**

Battery and Fuel Cell Research Center, Korea Institute of Science and Technology

*Samsung Heavy Industry, **KEPRI-CASEE

요 약

용융탄산염 연료전지의 대형화에 관한 기본 기술을 확립하기 위하여 전극의 유효면적이 625 cm^2 인 단위전지를 20단 적층한 내부 분배형 용융탄산염 연료전지 스택을 제작하고 그 성능을 살펴보았다. 연료로 72% H_2 /18% CO_2 /10% H_2O 를, 산화제로는 70% air/30% CO_2 의 혼합 기체를 사용하여 운전한 결과 전류밀도가 150 mA/cm^2 이고 연료 및 산화제의 이용율이 0.4일 때, 스택 전압이 16.62 V로 1.56 kW의 높은 초기 출력을 나타내었다. 스택 내 분리판에서의 온도 분포는 가스 흐름 방향으로 온도가 증가하였으며 스택 출력이 높아질수록 가스 배출 부분의 온도가 상승하였다. 스택 내 각 단위전지간의 성능 분포는 균일하지 않았으며, 가스이용율에 따라 그 편차가 증가하였다. 연속 운전 300시간 후부터 스택의 성능이 감소하였으며, 그 원인을 분석한 결과 탄소 석출과 부식 생성물에 의한 전기 단락 때문으로 밝혀졌다. 본 연구를 통하여 anode 출구에서의 가스 조성을 분석함으로써 전기 단락에 의한 전압 손실량을 계산하는 기법을 확립하였다. 또한 본 연구에서 얻은 결과를 통하여 향후 스택의 대형화와 장수명화에 대한 대책을 제시하였다.

Abstract— A 1.5 kW molten carbonate fuel cell stack consisting of twenty single cells has been fabricated and tested to establish the basic technology for kW-class stacks. Each cell in the stack had an effective electrode area of 625 cm^2 , and reactant gases were distributed in each cell in a co-flow configuration. It was possible to have a stack with a high initial output of 1.56 kW using an anode gas of 72% H_2 /18% CO_2 /10% H_2O and a cathode gas of 70% air/30% CO_2 at a current density of 150 mA/cm^2 and a gas utilization of 0.4. The temperature in the separator plate increased in the direction of gas-flow, and the temperature at the gas outlet increased with increasing the current density. The distribution of cell voltages in the stack, however, was not uniform and the voltage deviation increased with increasing gas utilization. After 300 hours of operation, the stack performance decreased due mainly to the short-circuit caused by carbon deposition and corrosion. And voltage loss due to the short-circuit was calculated by analyzing the gas composition at the anode outlet. Future works required to enhance the performance and life of a large-scale stack were identified from the result of this work.

1. 서 론

용융탄산염 연료전지(Molten Carbonate Fuel Cell, MCFC)는 고가의 귀금속 촉매를 사용하지 않으면서도

고온의 폐열을 이용하여 복합발전이 가능한 연료전지로, 인산 연료전지에 이어 21세기 초 상업화를 목표로 현재 미국에서는 2 MW급¹⁾을, 일본에서는 1 MW급 발전플랜트²⁾를 건설 중에 있다. 국내에서는 대체에너지 기술 개발

사업의 일환으로 개발이 시작되어, 현재 G7 사업에 의하여 2000년까지 MW급 스택의 기본이 되는 100 kW 용융탄산염 연료전지 시스템 개발을 목표로 연구가 진행되고 있다. MCFC의 실용화를 위해서는 전지의 고성능화와 장수명화 그리고 구성요소의 대형화 등이 필요하다. 선진국의 경우에는 스택의 40,000시간 운전 중 150 mA/cm²의 전류밀도에서 단위전지 평균 0.7 V 이상의 전압을 계속 나타내는 것을 개발 목표로 설정 하고 있으며, 현재 1 m² 정도의 대형 전극을 사용하고 있다.

용융탄산염 연료전지의 고성능화를 위해서는, 전극에서의 반응 면적 증가와 기공 분포의 최적화, 각 요소 내로의 전해질 함량 최적화 그리고 구성요소의 두께 편차 감소와 접촉 저항 감소 등이 필요하다. 또한 40,000시간의 수명을 달성하기 위해서는, 전극과 분리판의 적층으로 이루어지는 스택(stack)에 있어 고온 작동에 따른 금속 재료의 안정성, 특히 전극 재료인 산화 니켈의 용해 문제와 스테인레스 스틸 분리판의 부식 문제를 해결해야 하며, 목표 수명동안 그 물성이 변하지 않도록 전극과 전해질판을 제조해야 한다. 요소의 대형화에서는 구성 요소 각 부위의 물성이 동일해야 하며, 요소의 두께 편차가 작아야 한다. 또한 MCFC의 상용화를 위해서는 전극, 전해질판, 분리판 등의 구성요소의 저가격화도 필요하다.

본 연구팀은 현재까지 유효 면적 100 cm² 크기의 단위전지를 10장 적층한 100 W급 십자흐름(cross-flow)형 스택³⁾과 이를 20장 적층한 200 W급 같은방향흐름(co-flow)형 스택⁴⁾을 제작하여 성능을 시험한 바 있다. 본 연구에서는 전극 유효 면적을 625 cm²(25 cm×25 cm)의 크기로 증가시킨 단위전지를 20단 적층한 스택을 구성하고, 운전 변수에 따른 스택의 성능을 살펴봄으로써 MCFC 대형화에 있어서의 문제점을 파악하였다. 특히 대형화에 수반되는 전극 및 전해질판의 재현성 문제, 온도 및 가스 분포의 균일성 문제와 더불어 고온 탄산염의 부식성에 의한 구성 요소의 물성 변화, 분리판의 부식 등에 대하여 조사함으로써 MCFC 대형화 및 장수명화에 필요한 기반 기술을 구축하는데 본 연구의 목표가

있다. 본 연구에서 제작한 스택의 사양을 Table 1에 나타내었다.

2. 실험

2-1. 전지 구성 요소의 제조

스택에 사용된 anode는 테이프캐스팅(tape-casting) 방법에 의해 제조되었으며, 대체적인 공정은 Ni-10% Cr 시료와 분산제, 용매, 결합제, 가소제 등을 혼합하는 슬러리 제조 공정과 기포를 제거하는 탈포 공정, 테이프캐스팅에 의한 green sheet 제조 공정, 건조 공정 및 소결 공정을 통해 전극이 제조되었다. 이 때 anode의 소결은 20% 수소(질소 밸런스)를 사용하여 1000°C에서 이루어졌다. Cathode는 소결 온도를 700°C로 하는 것을 제외하고는 anode와 동일한 방법으로 제조되었으며, Ni 전극이 전지 내에서 전처리 과정을 통하여 산화되고(in-situ oxidation), 동시에 전해질 성분 중의 Li₂CO₃와 반응하여 lithiated NiO로 변화되었다. Matrix와 전해질판도 전극과 유사한 방법으로 제조되었으며, 전처리 과정을 통하여 첨가물이 제거되었다. 본 연구에서 스택 제작에 사용된 구성요소들은 100 W나 200 W급 스택에 사용된 것에 비해 그 면적이 6배 이상 증가하여 대면적화에 따른 두께 편차나 물성의 불균일 등의 문제점을 예상할 수 있지만 수 차례에 걸친 시행 착오와 단위전지 실험을 통해 비교적 균일한 물성의 요소를 제작할 수 있었다.

2-2. 분리판 설계 및 제작

분리판은 SUS 316L 재질의 중간판 1장과 마스크판 2장으로 이루어져 있으며, 분리판의 양쪽에 가스 분배구가 각각 5개씩 제작되어 있다. 중간판에는 에칭 가공에 의한 기체 통로가 형성되어 있으며, 중간판은 상, 하부 마스크판과 레이저 용접에 의하여 접합되어 분리판 외부로의 기체 누출이 방지되고, anode 및 cathode 가스의 혼합도 방지되었다. 분리판 내에서의 가스흐름은 같은방향흐름(co-flow) 방식으로, anode 가스는 분배구 2개를 통하여 유입되고 맞은편 3개의 분배구로 배출되며, cathode 가스는 같은 방향으로 3개의 분배구를 통하여 공급된 후 2개의 분배구로 배출되었다. 맨 아래 및 맨 위 분리판은 60 mm 두께의 판을 사용하여 열 분포를 균일하게 하도록 하였으며, 상하 분리판을 제외한 다른 분리판의 두께는 5.4 mm이었다. 스택 중간 부분에는 온도 측정을 위하여 두께 10 mm의 분리판을 별도로 제작하여 열전대를 삽입하였다.

2-3. 실험장치 및 전처리

스택 실험 장치는 이전의 경우와 유사하게 제작되었

Table 1. Specification of 1.5kW MCFC stack.

Item	Specification
Output power	1.5 kW
Area of electrode	625 cm ² (25×25 cm)
Cell number	20 cells
Gas distribution	Co-flow type
Anode (porosity)	Ni+10% Cr (50~55%)
Cathode (porosity)	Lithiated in-situ NiO (70~80%)
Electrolyte	68 mol% Li ₂ CO ₃ /38 mol% K ₂ CO ₃
Matrix (porosity)	LiAlO ₂ (55~60%)

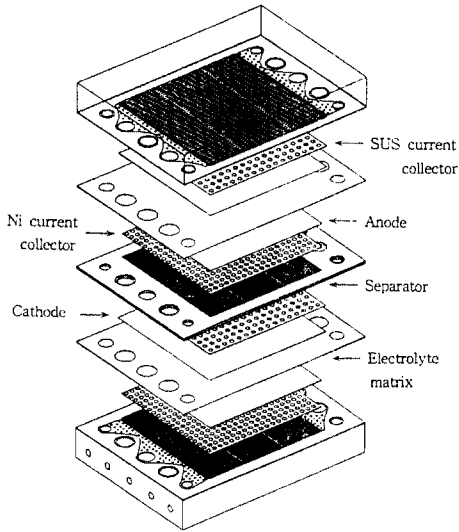


Fig. 1. Configuration of a co-flow type 1.5 kW MCFC stack.

으며³⁾, 스택의 연속 운전을 위해 충분한 양의 기체를 저장할 수 있는 저장소를 설치하였다. 전극 면적 625 cm²의 단위전지를 20단 적층한 스택을 Fig. 1과 같이 구성하여 성능 실험을 수행하였다. 스택 제작시 적층 과정은 분리판에 Ni 집전판 및 anode를 장착한 후, 그 위에 전해질 및 matrix 판을 놓고, 스테인레스 스틸 집전판 및 cathode가 장착된 분리판을 설치하는 순서로 진행되었다. 적층이 완료된 스택은 실험 장치에 옮겨져 전처리 과정을 거친 후 성능 실험이 수행되었다.

스택의 전처리 과정은 구성 요소 제작시 첨가된 유기물의 제거와 cathode의 in-situ oxidation을 위해서 350°C 까지 공기를 주입하였고, 이후 점차 표준 가스 조성으로 바꾸었다. 전지 구성 요소의 면적이 넓어 전처리 시간을 총 280시간으로 조절하였으며 스택의 성능은 온도가 650°C에 도달하여 성능이 안정된 후 측정하였다. 정상 조업온도는 650°C(중간판 기준)이었으며 조업 압력은 상압이었다. 유입가스의 조성은 cathode의 경우 33% O₂/77% CO₂ 또는 70% air/30% CO₂이었으며, anode의 경우에는 72% H₂/18% CO₂/10% H₂O이었다.

2-4. 전해질 함유량의 측정

스택의 운전 후 전극에 함유된 전해질의 양은 무게 측정법³⁾에 의해 계산되었다. Anode 내에 함유된 전해질의 양은 증류수에 넣고 3시간 끓인 다음 120°C에서 12시간 건조후의 무게와 초기 무게와의 차이로 계산하였으며, cathode의 경우에는 10% 초산 수용액 속에서 30분 동안 전해질을 용출시킨 후 anode와 같이 계산하

였다. 매트릭스 내에 함유된 전해질량은 원자흡광법(AA)에 의해 산출된 Li, K, Al 량을 기초로 계산되었다. Anode의 기공율은 몰흡수법으로 계산하였으며 cathode의 경우에는 두께로부터 계산하였다. 매트릭스의 기공 분포 및 기공율은 porosimeter(Micromeritics, AutoporeII 9220)를 이용하여 측정하였다.

3. 실험 결과

3-1. 스택의 초기 성능 및 단위전지들의 성능 분포

Fig. 2에 전류밀도 150 mA/cm²에서 수소 및 cathode 가스의 이용율이 0.4가 되도록 반응가스의 공급 유속을 일정하게 유지하였을 경우 스택의 전류-전압 관계를 도시하였다. Cathode 가스로 33% O₂/67% CO₂(이하 O₂-CO₂)를 사용하였을 경우 스택의 온도가 650°C에 도달하여 120시간 운전 후 측정된 개회로 전압은 22.19 V이었으며, 150 mA/cm²(총 전류=93.8 A)에서의 전압은 18.18 V로 1.70 kW의 출력을 나타내었다. 한편 스택 운전이 시작된 후 217시간이 지났을 때 70% air/30% CO₂(이하 공기-CO₂)를 cathode 가스로 사용하였을 경우에는 개회로 전압이 21.16 V, 150 mA/cm²에서의 전압은 16.62 V로 이 때의 출력은 1.56 kW이었다.

스택에서 각 단위전지의 평균 개회로 전압은 cathode 가스로 O₂-CO₂를 사용하였을 경우에는 1.110 V/cell, 공기-CO₂를 사용하였을 경우에는 1.058 V/cell이었다. 이 값은 Nernst 식으로부터 구한 이론치 개회로 전압(O₂-CO₂ 사용시 1.12 V/cell, 공기-CO₂ 사용시 1.07 V/cell)보다 10 mV/cell 정도 낮은 값으로 전해질 matrix의 면적 대형화에 있어서 가스 cross-over가 최소화 되도록 보다 균일하게 제작해야 할 필요가 있다고 생각된다. 전류밀

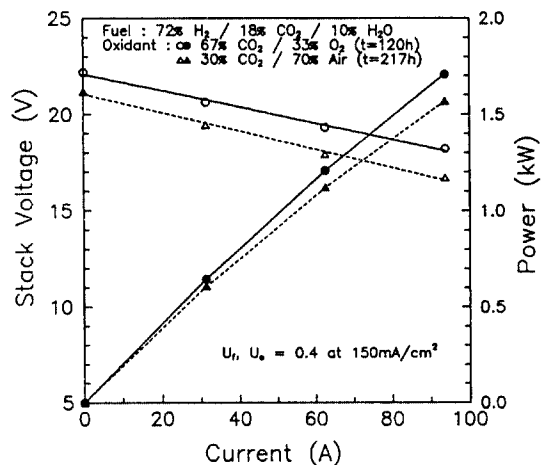


Fig. 2. Performance of a 1.5 kW MCFC stack.

도 150 mA/cm²에서 각 단위전지의 평균 성능은 cathode 가스로 O₂-CO₂를 사용하였을 경우에는 0.909 V/cell, 공기-CO₂를 사용하였을 경우에는 0.831 V/cell 이었다. 이 값은 같은 조건에서 수행된 전극면적 100 cm²의 단위전지 실험 결과(O₂-CO₂ 사용시 0.9 V 이상/cell, 공기-CO₂ 사용시 0.8 V 이상/cell⁹)에 근접하여 초기 성능에 관한 적층에 수반되는 여러 문제점들이 어느 정도 해결되었음을 나타낸다.

Fig. 3과 Fig. 4에는 cathode 가스가 각각 O₂-CO₂와 공기-CO₂ 일 때 단위전지 1번(아래쪽 끝단)부터 20번까지의 각 단위전지들의 성능이 전류밀도 및 연료이용율에

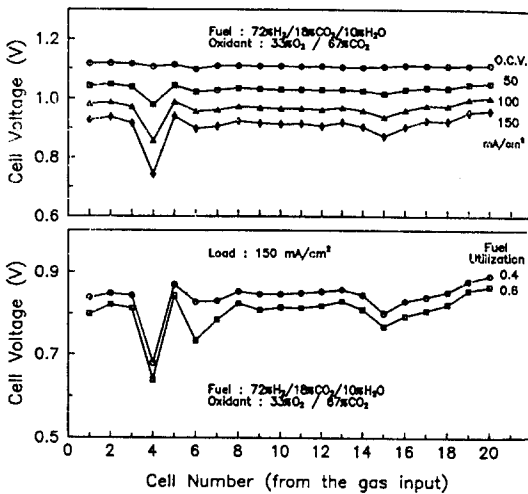


Fig. 3. Distribution of cell voltages in a 1.5 kW MCFC stack (cathode gas: 33% O₂ in CO₂).

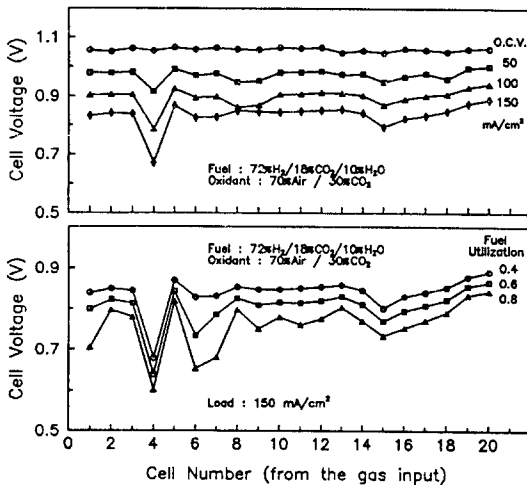


Fig. 4. Distribution of cell voltages in a 1.5 kW MCFC stack (cathode gas: 70% air in CO₂).

따라 나타나 있다. 개회로전압은 단위전지 4번 과 6번 을 제외하고는 모든 단위전지에서 거의 일정한 값을 보이고 있다. 단위전지간의 성능편차는 부하 전류가 증가하거나 연료이용율이 커질수록 증가하는데, 이것은 각 단위전지간의 적층 및 운전환경(유량 및 유압분포, 스택 내의 온도분포)의 차이가 전기화학적 가역전위인 개회로전압에는 별로 영향을 주지 않고 비가역적 분극전위의 형성에 크게 관여한다는 것을 말해주고 있다.

한편 각 단위전지간의 성능 편차가 선진국에 비해서 크게 나타나 향후 전지 구성 요소의 두께 및 기공 분포, 스택 내의 가스 유량 및 온도 분포를 더욱 균일하게 하여 단위전지간의 성능 편차를 감소시켜야 하는 과제를 남기고 있다. 즉, IHI⁹에서 경험적으로 제시된 스택 내의 단위전지간 성능의 표준편차는 전극 면적과 적층 단수를 고려했을 때 10 mV임에 비해, 본 스택의 경우에는 150 mA/cm²에서 단위전지 성능 분포에 대한 표준 편차가 O₂-CO₂를 산화제로 사용하고 연료이용율이 0.4일 경우에는 42 mV, 공기-CO₂를 산화제로 사용하고 연료이용율이 0.8일 경우에는 58 mV로 높았다. 같은 조건에서 이전에 수행한 200 W급 스택⁴의 편차는 각각 14 mV와 33 mV이었다.

3-2. 가스이용률 및 가스조성의 영향

반응가스의 이용율을 증가시키면(즉, 반응가스의 유량을 감소시키면) 전극 가스 공급부에서의 가스 농도에 비해 가스 출구에서의 가스 농도가 낮아지게 되므로 전지의 성능은 낮아지게 된다. Fig. 5에는 연료이용율에 따른 스택의 성능 변화가 도시되어 있다. 연료이용율에 대한 스택의 평균 전압 변화량은 운전시간이 125시간이고 산화제로 O₂-CO₂를 이용했을 때 -1.82 V/%이었으며, 시간이 지남에 따라 조금씩 증가하여 운전시간이 197시간이

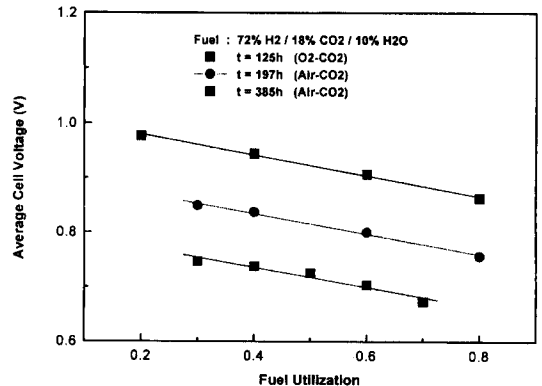


Fig. 5. Effect of fuel utilization on the MCFC stack performance.

고 산화제로 공기-CO₂를 이용했을 경우에는 -1.86 V/%, 385시간의 경우는 -1.90 V/%이었다. 본 스택의 전압 변화율은 단위전지 실험 결과⁹⁾인 -1.7 V/% 보다 약간 높은 값을 나타내었다. 또한 연료이용율에 따라 각 단위전지의 성능이 불균일해짐을 알 수 있는데(Fig. 4), 연료이용율이 0.4일 경우 4번 및 15번을 제외하고는 비교적 성능이 고르게 분포되어 있으나, 연료이용율이 증가할수록 1번, 6번과 7번 단위전지의 성능이 다른 전지에 비해 크게 감소한 것으로 보아 이들 단위전지에는 연료이용율 증가에 따른 연료가스 배분에 문제가 발생함을 알 수 있다. 산화제 이용율에 대한 스택 성능의 변화량은 -0.67 V/%로 anode에 비해서는 작은 것으로 나타났다.

Anode 및 cathode 공급 가스의 총 유속을 고정시키고 조성을 변화시켰을 경우 스택의 성능을 Fig. 6 및 Fig. 7에 도시하였다. Anode 가스 중 수소의 농도를 증가시키면 Fig. 6에서와 같이 스택의 성능은 증가하였으며, 이는 수소 농도 증가로 인한 평형 포텐셜의 증가에 기인

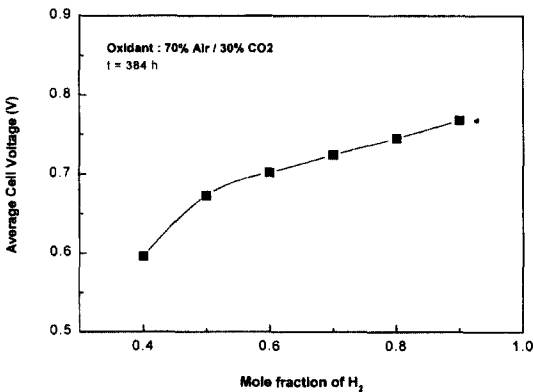


Fig. 6. Effect of H₂ concentration on the MCFC stack performance.

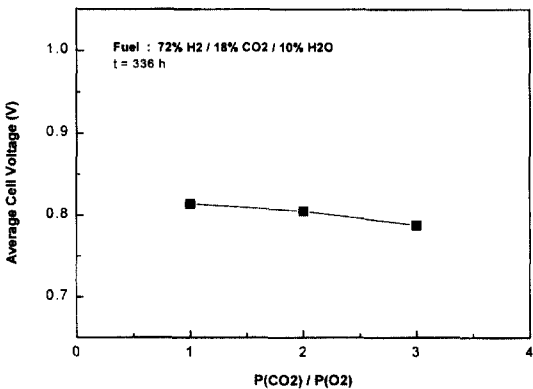


Fig. 7. Effect of cathode gas composition on the MCFC stack performance.

하는 것이다. Cathode 조성을 변화시킬 경우 P_{CO₂}/P_{O₂}=2인 조건에서 평형 포텐셜은 최대이나, 전해질 matrix에서의 gas crossover 및 cathode에서의 분극 정도에 따라 전지 성능이 최대인 조성이 달라진다. Cathode에서의 전극 반응이 율속단계이면 P_{CO₂}/P_{O₂}=2인 조성에서 성능이 최대가 되고, 반응가스의 물질전달 과정이 율속단계이면 상대적으로 용융탄산염에 대한 용해도가 작은 산소의 농도가 커져야 전지의 성능이 최대값을 갖게 된다. Fig. 7에 의하면 P_{CO₂}/P_{O₂}=1일 때 즉, 평형몰비보다 산소의 농도가 커질 때 성능이 높은 것으로 보아 본 스택은 운전 시간이 336시간 일 때 cathode에서의 물질 전달 저항이 크다는 사실을 알 수 있다.

한편 cathode 가스를 CO₂/O₂=67/33에서 CO₂/air=30/70으로 치환할 때, 150 mA/cm²에서 P_{CO₂}/P_{O₂}=2의 상태를 유지하며 질소를 첨가할 경우에는 Fig. 8에 나타난 바와 같이 스택 성능이 계속 감소하여 1.35 V(68 mV/cell)의 전압손실이 발생하였다. 실험 전후 개회로 전압의 차이는 1.03 V(52 mV/cell)로 측정되어, 나머지 손실 0.32 V(16 mV/cell)은 질소 첨가로 인한 cathode에서의 농도 분극에 기인한다고 생각된다.

3.3. 스택 내부의 온도 분포

스택 내부에서는 가스 및 분리판의 열전달과 불균일한 전류밀도 분포에 의해 각 단위전지에서의 온도가 달라진다. 본 실험에서 사용한 분리판은 두께가 너무 얇아, 각 분리판에 온도를 측정할 수 있는 열전대를 장착하지는 못하였으며, 상, 하 분리판 및 중간 분리판(분리

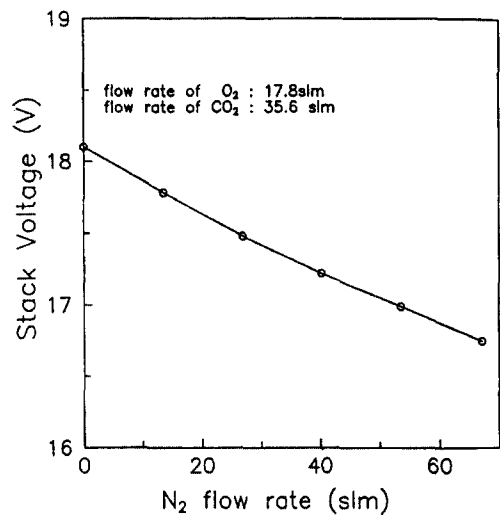


Fig. 8. Effect of N₂ addition to the cathode gas on the MCFC stack performance.

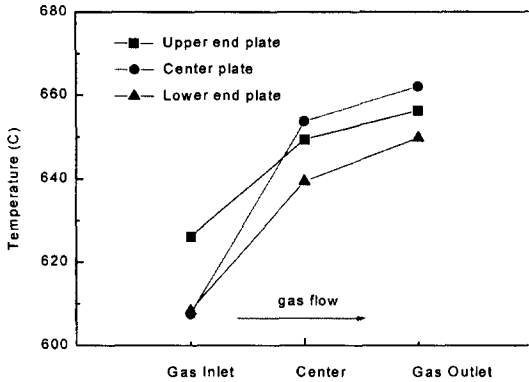


Fig. 9. Temperature distribution in a 1.5 kW MCFC stack.

판 10번)의 온도만을 측정하였다. 212시간 운전 후 150 mA/cm²에서 스택이 작동할 때 10번 분리판과 상, 하단 분리판의 온도를 측정하여 Fig. 9에 그 결과를 도시하였다. 온도가 가장 높은 부분은 중간 분리판 전극의 가스 배출부분(온도 662°C)이었으며, 전체적으로 볼 때 가스 공급부의 온도가 낮았고, 가스 흐름방향으로 온도가 증가하였다. 전지가 150 mA/cm²에서 작동할 때 중간 분리판에서의 온도 편차는 약 60°C이었으며, 전류가 증가함에 따라 전극 반응열의 증가 및 스택의 내부저항으로 인한 발열로 스택의 온도가 증가하였다. 전극의 면적이 증가함에 따라 반응열이 커지므로 스택의 온도는 증가하게 된다. Fujimura 등⁹⁾의 계산에 의하면 전극 면적이 3600 cm²이고 같은 방향 흐름형 분리판에 있어 그 온도 편차는 103°C이며 최대온도는 710°C였다. 이 온도는 계산에 의한 것으로 연료전지가 정상적으로 작동할 때의 결과를 나타내는 것이다. 하지만 실제 용융탄산염 연료 전지에서는 전기단락이나 hot spot 등에 의한 국부적인 온도 상승 문제가 발생하므로 실제 스택에서의 온도 편차는 이보다 더 높게 올라갈 것으로 예상할 수 있다. 그러므로 요소의 대형화에는 고온에서 내구성을 보이는 요소의 개발이 반드시 필요하다고 하겠다.

한편 전지가 150 mA/cm²에서 정상적으로 작동할 때에는 분리판의 온도를 670°C 이내로 조절할 수 있었지만 Fig. 10에 나타나 있듯이 300시간 이상 운전 시간이 경과하였을 때부터 스택의 온도는 크게 증가하여, 460시간 경과 후에는 최대 764°C까지 증가하였다. 이때 냉각효과를 얻기 위하여 cathode 가스의 이용율을 0.3으로 낮추어도(즉, 유량을 증가시켜도) 스택의 온도는 700°C 이하로 감소하지 않았으며, 부하를 걸지 않은 OCV 상태에서도 마찬가지로였다. 이러한 비정상적인 온도 상승은 위에서 설명하겠지만 전기 단락 때문인 것으로 밝혀졌다.

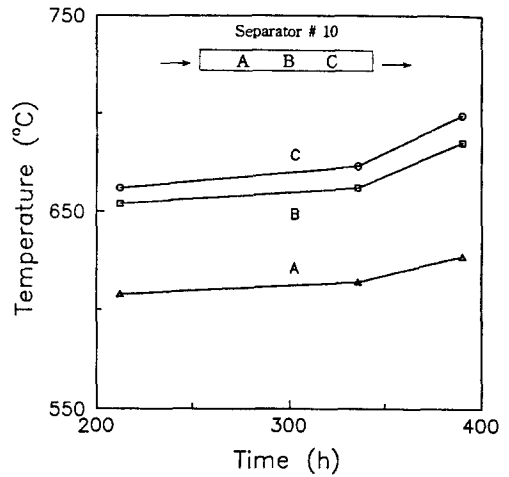


Fig. 10. Temperature distribution in the separator #10 during the MCFC stack experiment.

3-4. 연속 운전에 따른 성능 변화

Fig. 11에는 본 스택을 500시간 동안 운전하였을 경우 스택의 성능의 변화가 도시되어 있다. 스택은 실험 초기에는 O₂-CO₂를 산화제로 사용하였으며, 이 기간 동안에 개회로 전압에는 큰 변화가 없었으나 150 mA/cm²에서의 성능은 조금씩 증가하다가 190시간 정도에서 일정하였다. 스택 성능이 약간 증가하는 이유는 matrix 내 전해질의 분포가 균일해지고, cathode의 lithiation에 의하여 전도도가 증가되어 스택의 내부저항이 감소했기 때문이라 생각되었다. 운전시간 190시간에서 산화제를 공기-CO₂로 치환하고 전류밀도 150 mA/cm²로 연속운전을 수행한 결과 300시간 이후 성능 감소가 관찰되어, 380시간 부근에서 다시 산화제를 O₂-CO₂로 바꾸어 실험을 수행하였다. 하지만 이후 지속적인 성능감소와 비정

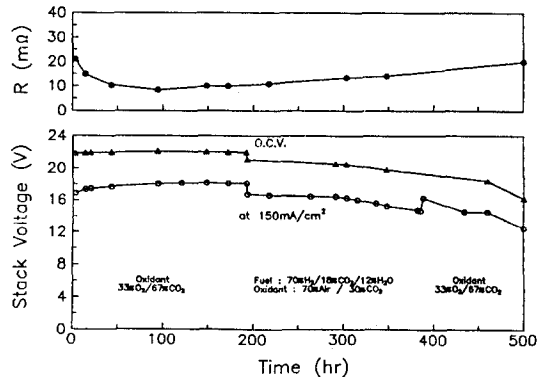


Fig. 11. Performance of a 1.5 kW MCFC stack during the continuous operation.

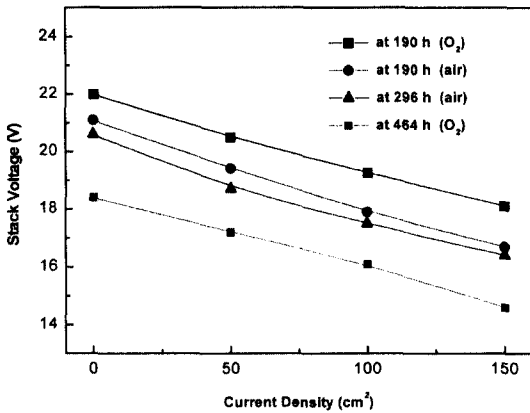


Fig. 12. Degradation of the MCFC stack performance during the stack test.

Table 2. Post-test analysis of carbonate impregnated in the pores of electrodes.

Cell	Operation time (hour)	Leached carbonate		Total carbonate loss (wt%)
		anode wt%/vol%	cathode wt%/vol%	
1.5 kW stack (ST-9)	500	3.6/17	9.8/18.3	28
100 cm ² unit cell (TW40)	500	8.0/41	22.8/44	14
100 cm ² unit cell (TW22)	5100	7.1/34	11.2/18.8	34

상적으로 증가하는 온도 때문에 더 이상 실험을 하지 않고 500시간 운전 후 스택을 해체하였다.

Fig. 12에 각 운전 시간에서의 전류밀도에 따른 스택 성능을 나타내었다. 운전 시간이 464시간 지났을 때 스택의 성능은 190시간에서의 성능에 비하여 개회로 전압의 감소가 3.6 V이고 150 mA/cm²에서의 성능 감소가 3.5 V이므로, 운전 시간에 따른 스택의 전압 감소는 거의 개회로 전압의 감소에 기인함을 알 수 있다.

3-5. 실험 후 전해질 함량 분석

Table 2에 500시간 운전 후 셀 4번과 10번에 대한 평균 전해질 함량과 총 손실량을 단위전지 실험치와 비교하여 나타내었다. 본 연구에서 시험한 스택에 있어서 각 전극 내의 전해질 함유량은 같은 운전시간의 단위전지 (Table 2의 TW40)에 비해 절반에도 미치지 못하는 것으로 나타났다. 더우기 본 스택보다 운전시간이 10배나 긴 단위전지 (Table 2의 TW22)에 비해서도 anode 내의 전해질 함침량이 절반밖에 되지 않은 것으로 분석되었다. 또한 적층시 첨가된 전해질은 부식반응과 증발에 의해 소모되는데, 본 스택에 있어서의 총 전해질 손실량은

같은 운전시간의 단위전지에 비해 두 배 가량 크게 나타났다. 이와 같이 1.5 kW 스택의 총 전해질 손실량이 크게 나타난 이유는 스택 내부의 온도가 높았기 때문에 분리판의 부식에 의한 전해질 소모가 크게 일어나고, 전해질의 증발이 많았기 때문이라 생각된다. 또한 기공 크기가 작은 매트릭스에서 부족한 전해질을 모세관 힘 (capillary force)으로 전극으로부터 흡수하였기 때문에 스택의 각 전극 내의 전해질 함량이 매우 적은 것으로 판단된다.

4. 고 찰

4-1. 스택의 전압 손실 분석

초기 스택 성능에서 전압 손실 요인을 구하기 위해서는 다음 식을 이용해야 한다.

$$V = E - (\Delta E + \eta + IR) \tag{1}$$

여기서 V는 연료전지의 작동전압, E는 반응가스로부터 계산되는 가역 전압이며 ΔE는 Nernst 손실, η는 전극 과전압에 의한 전압 손실 그리고 IR은 내부저항에 의한 전압 손실이다. Nernst 손실, ΔE는 연료전지 입구에서의 가역 전압과 연료전지 내부의 각 점에서의 가스 조성과 온도 차이에 의한 가역 전압의 차이를 나타낸다. 또한 전극 과전압, η는 전극 반응이 느리거나, 반응물의 이동 속도가 느리기 때문에 발생하는 전압 손실에 해당한다. 이 식을 바탕으로 전압 손실을 다음과 같이 계산하였다. 먼저 전류밀도를 150 mA/cm²로 일정하게 유지한 상태에서 가스이용율을 변화시켜 실험한 Fig. 13의 결과로부터 Nernst 손실값을 계산하였다. 전류밀도가 일정할 때 가스이용율에 따른 전압 곡선을 이용율이 0이 될 때까지 외삽하면 이 전류밀도에서 얻을 수 있는 최대 전압이 산출되며, 이 최대 전압값과 각 이용율에서의 성능값의 차이가 그 이용율에서의 Nernst 손실이다. Fig. 13으로부터 구한 Nernst 손실값은 1.28 V이었다. 또한 개회로 상태에서 milliohm-meter에 의하여 측정된 저항값을 보정하여 스택의 내부저항을 구하면 16.8 mΩ으로 전류밀도 150 mA/cm²(총 전류밀도 93.8 A)에서의 내부저항 손실을 계산하면 1.57 V이다. Cathode 가스로 공기-CO₂를 사용할 경우 150 mA/cm²에서의 전압 손실은 4.54 V(0.227 V/cell)이므로, 여기서 Nernst 및 내부저항 손실을 뺀 나머지 1.69 V가 전극 분극 손실에 해당한다. Cathode 가스로 공기-CO₂를 사용할 경우 전류밀도 150 mA/cm², 가스이용율 0.4의 조건에서 앞에서 언급한 방법으로 각 단위전지에 대한 전압 손실을 계산하여 도시하면 Fig. 14와 같다. 성능이 가장 낮은 단위전지 4번 및 15번의 경우 Nernst 손실은 타 전지와 비슷하

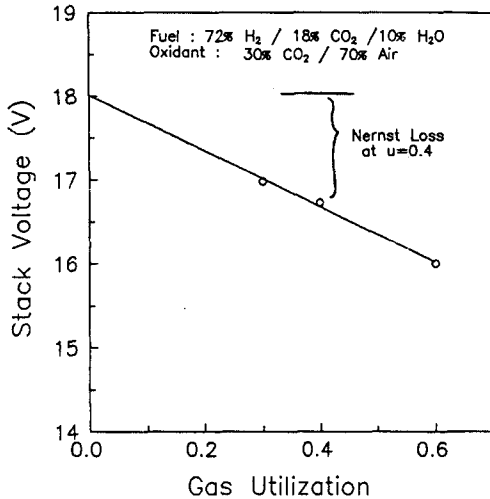


Fig. 13. Effect of gas utilization on the performance of 1.5 kW stack at 150 mA/cm².

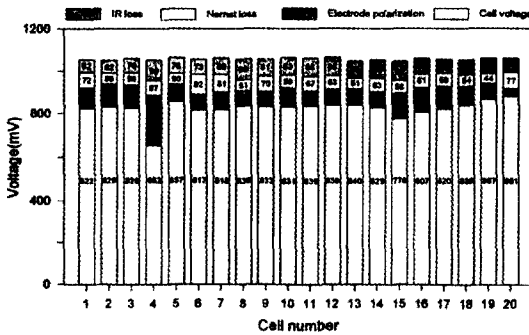


Fig. 14. Voltage loss in each cell in a 1.5 kW MCFC stack (cathode gas: 70% air in CO₂).

나 내부 저항 및 전극 분극에 의한 전압 손실이 높아 성능이 떨어짐을 알 수 있다. 단위전지 6번 및 7번은 Nernst 손실이 높아 분배구로부터 공급되는 반응 가스량이 다른 단위전지에 비해 작다고 할 수 있으며, 그 원인은 분리판 및 가스 통로가 불균일하기 때문이라 여겨진다.

4-2. 연속 운전에 따른 스택 성능 감소의 원인

연속 운전시 본 스택의 성능 감소 요인은 Fig. 12에서 보았듯이 대부분 단위전지에서의 개회로 전압 감소에 있으며, 그 원인으로 1) gas crossover, 2) wet seal 파손으로 인한 가스 누출, 반응 및 조성 변화, 3) 부식을 또는 석출탄소에 의한 분리판 간의 전기단락(short circuit) 등을 들 수 있다.

우선 전해질 matrix를 통한 gas crossover는 개회로 전

압을 감소시키나, 운전시간 303시간에서 matrix를 통하여 cathode로부터 anode로 흘러드는 N₂의 양은 1.16%로 측정되어 초기에 측정된 1%에 비해 크게 증가하지 않은 것으로 나타났다. 운전시간 460시간에서도 비슷한 수치를 나타내었으므로 매트릭스를 관통하여 전극 부분으로의 gas crossover는 별로 심각하지 않았다고 판단된다.

개회로 전압 감소의 또 다른 이유는 분리판 가스 분배구로부터 스택 외부로 수소와 공기의 누출과 반응에 의한 가스 조성 변화를 들 수 있다. 실제로 스택 해체 직전에 수소 누출이 확인되었으며, 스택 해체시 가스 분배구 부근의 wet seal에서 부식이 매우 심각한 것으로 관찰되어, wet seal 부분을 통한 가스 누출과 anode, cathode 가스의 혼합 및 이에 따른 가스 분배구 내의 반응 가스 조성 변화가 개회로 전압 감소의 한 원인으로 작용한 것으로 판단된다. 또한 cathode 및 anode 가스의 유량 차이 및 이에 따른 양 전극간의 압력차(본 실험에서의 측정치: 16 cm H₂O at 150 mA/cm²)로 인하여 전지 내에서 가장 취약한 부분인 전극, matrix 및 분리판이 만나는 전극 테두리 부분에서 가스의 누출 및 혼합이 일어나 개회로 전압이 감소할 가능성이 있다.

개회로 전압 감소의 셋째 원인으로 석출된 탄소와 부식 생성물이 분리판 사이를 전기적으로 연결(전기단락)하여 개회로 전압을 감소시킨 것으로 볼 수 있다. 실제로 스택 해체 후 분리판 wet seal 부위의 부식이 매우 심각하였으며, 가스 공급 분배구에서 다량의 탄소가 석출되었음을 확인하였다. 이 전기단락이 개회로 전압 감소, 즉 스택 성능 감소에 가장 큰 이유로 생각되는데 그 원인을 조사해보면 다음과 같다. 개회로 상태에서 anode 출구를 통해 나오는 가스를 가스 크로마토그램(HP5890)으로 분석하여 운전 시간에 따른 가스 조성의 변화를 Fig. 15에 나타내었다. 스택 운전 300시간이 지날 때부터 anode 출구를 통해 배출되는 수소의 양이 급격히 감소하고, CO₂의 양이 급격히 증가함을 알 수 있는데, 가스 분석시에 부하는 없었으므로(OCV 상태) 수소의 감소와 CO₂의 증가는 바로 전기 단락에 의하여 내부에서 전기화학 반응이 진행되었기 때문이다. Fig. 11에서 약 300시간 운전 시간이 경과한 후 스택의 성능이 감소한 것과 Fig. 15에서 이 시점부터 출구에서 수소의 양이 감소하는 것이 일치하고 있다.

한편 스택의 성능이 최대를 보였던 190시간에서의 부하 전류에 따른 anode 출구 가스의 조성을 도시하면 Fig. 16과 같다. Fig. 15와 16을 이용하여 anode 출구에서 수소의 양으로부터 단락 전류밀도를 계산할 수 있다⁹⁾. 464시간 운전시 anode 출구에서 수소의 양은 54%였으며 이를 Fig. 16의 data에 대입하면 100 mA/cm² 만큼의 단락 전류밀도가 발생한 것으로 나타난다. 즉, 464시간

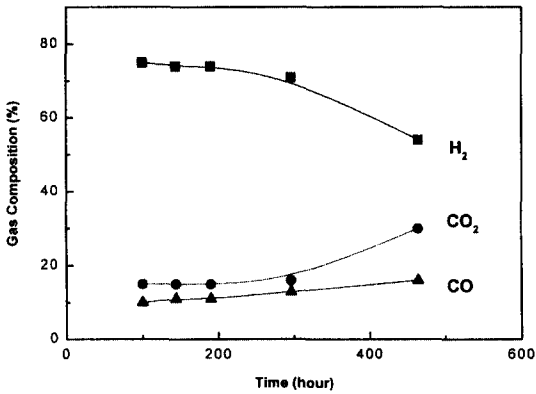


Fig. 15. Evolution of gas composition at the anode outlet during the MCFC stack test (at open circuit condition).

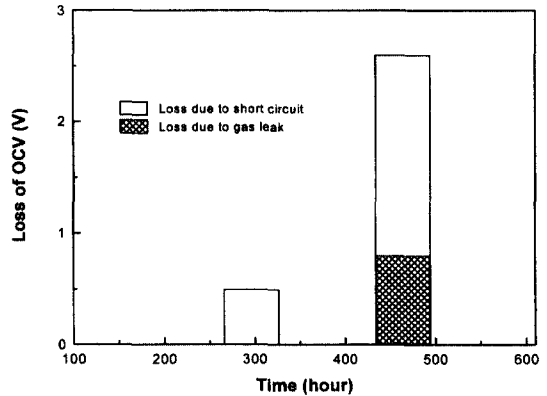


Fig. 17. Loss of open circuit voltage due to short circuit and gas leak.

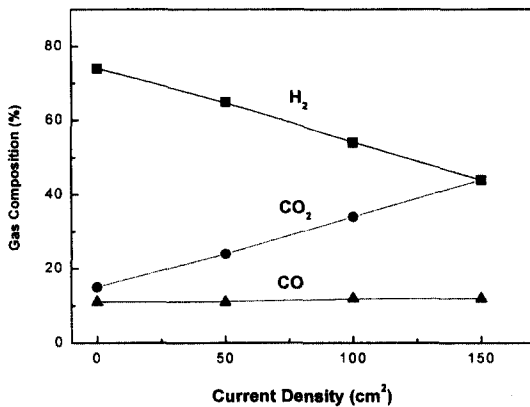


Fig. 16. Variation of gas composition at the anode outlet with respect to the current density after 196 hours of operation.

운전시 개회로 전압은 실제로는 부하가 100 mA/cm² 만큼 걸린 상태의 전압이었으며, 부하를 150 mA/cm² 만큼 가하였을 경우에는 실제의 부하는 250 mA/cm² 이었다는 것이다. 만약 464시간 운전시 단락이 발생하지 않고 다른 전압 강하가 없었다면 부하가 100 mA/cm² 만큼 걸렸을 때 190시간 운전시의 성능곡선(Fig. 12)에서 스택 전압이 19.2 V가 되었을 것이다. 464시간 운전시 OCV는 18.4 V였으며 이는 190시간 운전시의 OCV(Fig. 12) 22.0 V에 비하면 3.6 V 만큼의 총 전압손실이 발생한 것이 되며, 이 중 전기단락에 의한 전압손실은 총 전압손실의 78%인 2.8 V(22.0~19.2 V)가 된다. 총 전압 손실에서 단락 전압 손실을 뺀 값은 가스 누출에 의한 전압 손실로 사료된다.

운전 시간에 따른 총 전압 손실을 단락 전압 손실과 가스 누출 전압 손실로 나누어 나타내면 Fig. 17과 같

다. 운전시간 300시간 전에 전기 단락이 발생하였고 이때 가스 누출은 거의 없었다. 하지만 464시간에서는 단락에 의해 전압 손실이 훨씬 커졌을 뿐 아니라 가스 누출에 의한 전압 손실이 발생하였다. 가스 누출에 의한 전압 손실이 생긴 근본적인 이유는 단락에 의한 비정상적인 온도 상승에 있다. 300시간 운전이 진행되었을 때 전기 단락에 의한 전압 손실 때문에 부하를 150 mA/cm²로 걸어도 실제 부하는 170 mA/cm²가 되는 셈이 되어 이 때부터 스택 온도가 660°C 이상 올라가기 시작하였다(Fig. 10). 이후 전기 단락 때문에 스택 온도는 계속 증가하여 분리판의 부식이 가속화되었다(반응온도가 650°C에서 700°C로 증가하면 부식속도는 10배 이상 증가한다고 알려져 있다¹⁰⁾). Table 2에서 보듯이 매트릭스 면적에 대한 wet-seal 면적의 비에 있어, 1.5 kW 스택의 경우가 단위전지에 비해 큼을 고려할 때 이 스택의 총 전해질 손실량이 상대적으로 매우 많음을 알 수 있다. 이 부식 생성물 때문에 단락에 의한 전류 손실은 커지게 되고 또한 매트릭스 내의 전해질이 부식반응에 소모되어 wet-seal 부위를 통해 가스 누출이 생기게 된다. 시간이 지남에 따라 온도는 계속 상승하여 460시간쯤에는 스택의 온도가 760°C 이상 올라가는 등 계속되는 온도 상승에 따른 부식 속도의 증가와 매트릭스의 손상으로 인해 단락 전압 손실과 가스누출 전압 손실이 매우 커지게 되었다. 앞서서도 언급하였듯이 460시간 이후에는 수소의 누출이 관찰되었는데 이는 스택의 온도가 760°C 이상 올라가서 전극과 매트릭스에 손상이 생겨 가스의 누출이 발생했던 것으로 보인다.

한편 300시간 운전시 발생한 전기적 단락의 원인인 탄소 석출에 대해 살펴보면 다음과 같다. MCFC의 anode 가스는 천연가스(주로 메탄)를 개질해서 나오는 개질가스(출구조성, H₂:CO₂:CO=78:11:11 mol%)를 사용하지만¹¹⁾

본 실험에서는 개질기를 사용하지 않고 반응 가스 중에 CO_2 를 첨가(anode gas, $\text{H}_2:\text{CO}_2:\text{H}_2\text{O}=78:12:10 \text{ mol}\%$)하여 개질 gas와 유사한 조성을 가진 혼합 가스를 사용하였다. Anode gas에 수증기를 첨가하는 이유는 CO가 C와 CO_2 로 바뀌는 이른바 Boudouard 반응에 의한 탄소 석출을 막기 위함이다. 열역학 data로부터 탄소가 석출되지 않는 수증기 조성을 살펴본 결과를 기초로 본 실험에서 anode gas에 첨가되는 물의 양을 항상 10 mol%가 되도록 하였다.

스택 실험 후 탄소석출 원인에 대한 실험을 별도로 수행해 본 결과, 350~600°C의 온도에서 수증기의 조성이 5% 미만일 때 특히, 500°C에서는 수증기의 조성이 10% 미만일 때 탄소가 석출됨을 알았다. 특히 가스관의 재질이 유리나 석영이었을 경우에는 수증기 조성이 10% 미만이어도 탄소가 석출되지 않았지만 스테인레스 스틸을 가스관으로 사용했을 때는 금속 표면이 촉매작용을 하여 Boudouard 반응 속도가 증가하고, 짧은 시간 내에 다량의 탄소가 석출됨을 관찰하였다. 스택 조업시 수증기의 조성이 5% 미만일 때는 거의 없었고 예열기부터 스택까지의 온도는 500°C 이상이므로 예열기와 스택 사이에서는 탄소가 석출되지 않았다고 판단된다. 하지만 본 실험 장치에서는 H_2 와 CO_2 가 만나는 지점이 예열기를 들어가기 훨씬 이전 지점이고 이 부분의 온도는 실온에 가까웠다. 그러므로 anode 가스가 스테인레스 스틸관 내를 흘러 예열기로 들어갈 때 수증기와 혼합되기 전 350~500°C 되는 지점에서나, 또는 이용율 변화 실험이나 가스 조성 변화 등의 실험을 할 때 수증기의 상대적인 조성이 10% 미만으로 낮아지는 경우에 예열기 부근에서 탄소가 석출되었으며 이 탄소가 스택의 입구 부분에서 침적이 되어 전기단락을 일으켰다고 생각된다.

이상의 결과를 종합하면 운전 시간에 따른 스택 성능의 감소 원인을 다음과 같이 요약할 수 있다. 먼저 200시간 후에 실시된 유량 변화 실험시 첨가되는 수증기의 양을 제대로 조절하지 못하여 예열기 부근에서 탄소가 석출되었고 이것이 스택의 가스 유입구에 침적되어 전기 단락이 발생하였다. 단락에 의한 실제 반응 전류의 증가로 인해 스택 온도가 조금씩 상승하게 되어 400시간 후 스택의 온도는 700°C를 넘어서서 분리판 부식과 전해질 손실이 가속화되었다. 이 부식생성물에 의해 전기적 단락은 더욱 더 심해지고 따라서 스택 온도는 760°C 이상까지 상승하여 분리판 부식에 의한 전해질 소모가 심해지고 wet-seal 부위 또는 전극 모서리와 매트릭스가 만나는 부분에서 가스 누출이 발생하여 개회로 전압이 감소하게 되었다. 이러한 단락에 의한 전압 손실과 가스누출에 의한 전압손실이 스택 전압을 감소

Table 3. Performance of MCFC stacks (cathode gas: 70% air/30% CO_2 ; gas utilization: 0.4).

STACK	100 W cross-flow stack (ST-4) [3]	200 W co-flow stack (ST-6) [4]	1.5 kW co-flow stack (ST-9)
O.C.V.	1.073 V/cell	1.057 V/cell	
Voltage at 150 mA/cm ²	0.635 V/cell	0.846 V/cell	1.058 V/cell
Power at 150 mA/cm ²	95 W	254 W	0.831 V/cell 1.56 kW
IR loss*	171 mV/cell	68 mV/cell	79 mV/cell
Electrode polarization*	196 mV/cell	64 mV/cell	77 mV/cell
Nernst loss*	71 mV/cell	79 mV/cell	72 mV/cell

*at 150 mA/cm².

시키는 원인이 되었다.

4-3. 여러 스택 실험 결과와의 비교

Table 3에 100 W, 200 W 및 1.5 kW 스택의 초기 성능과 전압 손실 요인을 함께 정리하여 나타내었다. 200 W 및 1.5 kW 스택의 경우 선진국 수준의 초기 성능을 보였으며 1.5 kW 스택의 경우 전극의 면적을 6배 이상 증가시켰음에도 초기 성능의 감소가 별로 없어 대형화의 기반을 어느 정도 구축하였음을 알 수 있었다. 1.5 kW 스택에서의 Nernst 손실은 같은 형태의 분리판을 사용한 200 W급 스택에 비해 전체적으로 약간 낮은 경향을 나타내었으며, 그 이유는 가스 통로 형태의 차이로 인한 반응 가스의 체류 시간 차이에 기인한다고 생각된다. 내부 저항에 의한 전압 손실 및 전극 부근 손실값은 200 W급 스택의 실험 결과와 비교해 볼 때 약간 높았으나 전극면적 625 cm² 단위전지 실험 결과¹²⁾와는 비슷한 수치였다.

4-4. 대형화 및 장수명화를 위한 향후 과제

본 실험에서 나타난 요소 제작 및 스택 운전 등에 있어서의 문제점과 그 해결책을 정리하여 향후 스택의 대형화와 장수명화에 대비하였다.

4-4-1. 전극 및 매트릭스

Fig. 3과 4에 의하면 스택 내 단위전지간의 성능 편차가 선진국에 비해 크게 발생하였다. 이는 요소의 대형화에 걸림돌이 되는 문제로 특히 산화제를 공기로 사용했을 때 그 편차가 심하게 나타났다. 해결책으로는 전극 소성 기술의 최적화를 통한 두께 편차 감소 및 기공 구조의 동일화가 필요하다. 또한 실험 후 각 요소를 분해해 본 바에 의하면 cathode의 경우 기존의 것에 비해 그 강도가 매우 약해 쉽게 분말로 으러짐을 관찰하였다. 이는 cathode의 소성 온도가 700°C인데 비해 실제 스택 내에서는 750°C 이상의 열충격을 받아 기공구조의 변화

가 생겼기 때문인 것으로 판단된다. 그러므로 고온(700°C 이상)에서도 물성의 변화가 최소화되도록 고온 소성 전극을 제조해야 한다.

4.4.2. 분리판

분리판의 부식생성물이 전기단락의 한 원인으로 생각되는 비-, wet-seal 부위에 대한 내식성 코팅이 반드시 필요하다. 현재 단위전지 및 소형 스택의 wet-seal 부위에 대한 Al 코팅 실험을 행하고 있으며 최적의 코팅두께 및 확산 열처리 온도에 대해 조사 중에 있다. 또한 공기 조업시 전압편차가 큰 또 다른 원인으로 분리판에서의 가스배분의 불균일성을 들 수 있는데 이의 해결을 위해 분리판의 채널(유로) 깊이와 폭의 최적화를 통해 가스 배분을 균일하게 해야 한다.

4.4.3. 스택 운전

본 스택이 장시간 조업할 수 없었던 가장 큰 원인이 anode 입구에서의 탄소 석출에 의한 전기 단락이었으므로 이의 해결을 위해 물과 anode 가스를 미리 혼합하여 예열기를 통과시켜야 하고, 또한 유량 변화시에 수증기의 조성이 10% 이상이 되도록 주의해야 한다.

5. 결 론

전극의 유효면적이 625 cm²(25 cm × 25 cm)인 단위전지를 20단 적층한 내부 분배형 MCFC 제작하여 운전한 결과 전류밀도가 150 mA/cm², 연료 및 산화제의 이용율이 0.4일 때 스택 전압이 18.18 V(공기조업시 16.62 V)로 1.7 kW(공기조업시 1.56 kW)의 출력을 나타내어 선진국 수준의 초기 성능을 얻는데 성공하였다. 공기 조업시 스택의 전압 손실 요인은 전극 분극 손실이 가장 높았으며 내부 저항 손실, Nernst 손실 순이었다. 그러나 각 단위전지들 개회로 전압이 이론치 보다 10 mV 정도 낮았으며, 성능 분포도 편차가 42~58 mV로 이전에 실험된 200 W급 스택⁴에 비해 높아, MCFC 대형화시 구성 요소의 특성 및 운전 환경을 보다 균일하게 할 필요가 있음을 알았다. 스택 내 온도 분포를 측정된 결과 가스 흐름 방향으로 온도가 증가하였으며, 스택 출력이 높아질 수록 전극에서의 가스배출 부분 온도가 상승하였다. 공기-CO₂를 산화제로 150 mA/cm²에서 연속 운전시 스택의 성능은 감소하였으며, 그 원인은 주로 스택 내 단위전지의 개회로 전압 감소에 기인하였다. 개회로 전압 감소는 전기 단락에 의한 감소와 가스 누출에 의한 감소 때문이었다. 즉, anode 분배구에서의 탄소 석출에 의한 전기단락으로 스택의 온도가 증가하기 시작했고, 이 온도상승이 분리판의 부식을 가속화하여 부식생성물

에 의한 2차 전기단락이 발생하였다. 이후 계속되는 온도상승과 전해질 손실로 전극과 매트릭스가 손상을 입게 되었고 결국 가스누출에 의한 개회로 전압의 감소를 야기시켰다. 탄소석출의 원인을 밝혀내었으며 출기가스 조성의 분석을 통해 단락 전류 손실량을 계산하였다. 본 연구에서 얻은 결과를 통해 향후 스택의 대형화와 장수명화에 대한 대책의 일부가 수립되었다.

감 사

본 연구는 과학기술처 지원 선도기술개발 사업(G7 사업)의 일환으로 에너지자원 기술개발 지원센터의 연구비 지원으로 수행되었으므로 이에 감사드립니다.

참고문헌

- O'Shea, T.P. and Leo, A.J.: "Santa Clara Demonstration Project the First 2-MW Carbonate Fuel Cell Power Plant", in 1994 Fuel Cell Seminar Program and Abstracts, San Diego, California, p. 462 (1994).
- Abe, T. and Koda, E.: *화학원자력발전*, **45**(7), 797 (1994).
- 남석우, 임태훈, 오인환, 이갑수, 윤성필, 홍성안, 임희천, 이창우, 선양국: *화학공학*, **33**(5), 559 (1995).
- 남석우, 이갑수, 임태훈, 오인환, 홍성안, 임희천, 강인준: *화학공학*, **34**(5), 651 (1996).
- Sonai, A. and Murata, K.: *Denki Kagaku*, **61**(11), 1288 (1993).
- 임태훈, 이갑수, 남석우, 오인환, 홍성안, 임희천: *화학공학*, **32**(5), 498 (1994).
- Sato, S.: "Performance and life of internally manifolded stack", in Proceeding of the 3rd International Symposium on Carbonate Fuel Cell Technology, Electrochemical Society, Pennington, NJ, p. 134 (1993).
- Fujimura, H., Kobayashi, N. and Ohtsuka, K.: *일본기계학회 논문집*, **57**(535), 825 (1991).
- Mugikura, Y., Abe, T., Izaki, Y., Yoshioka, S. and Urushibata, H.: *Denki Kagaku*, **62**(7), 624 (1994).
- Shores, D. and Pischke, M.J.: "The hot corrosion of current collector/separators in carbonate fuel cells", in Proceeding of the 3rd International Symposium on Carbonate Fuel Cell Technology, Electrochemical Society, Pennington, NJ, p. 214 (1993).
- Watanabe, T., Koga, M., Morishima, S., Toyoda, K. and Watanabe, K.: *IHI Reviews*, **28**(3), 133 (1988).
- 홍성안: "2 kW급 용융탄산염 연료전지 스택 개발 [II]", *한전기술연구원보고서* (1995).