

SOFC 단전지 / 스택 개발이슈

이해원, 김주선, 이종호
한국과학기술연구원 나노재료연구센터
{hwlee, joosun, jongho}@kist.re.kr

1. SOFC 기술 개발 동향

연료전지 기술은 가정이나 산업용 발전 장치로서의 발전 산업, 기존 내연기관을 대체할 구동 장치로서의 자동차 산업, 기존 배터리 대체전원으로서의 전자기기 산업 등 타 산업으로의 파급효과가 매우 큰 기술이다. 이러한 연료 전지 가운데 800°C 이상의 고온에서 작동하는 고체산화물 연료전지(SOFC)는 에너지 효율이 높으며 고가의 외부 개질장치 없이도 탄화수소가스를 직접 연료로 사용할 수 있는 시스템이다. 또한 SOFC는 크기나 형태, 용량에 대한 자유도가 높아 전력수요에 맞게 다양한 용량의 시스템 구성이 가능해 휴대용 전자기기의 초소형 전원으로부터 대형 복합 발전 시스템까지 아주 넓은 응용범위를 가지고 있다. 특히 내구성 있는 모듈화가 쉬운 SOFC는 mW급의 초소형 전원장치로부터 기존 grid형 발전시스템을 대체할 수 있는 수백 MW급 대형 발전시스템으로 까지 거의 전 범위의 에너지원을 대상으로 개발되고 있다.

그러나 SOFC의 장점중 하나인 높은 작동온도(800-1000°C)는 고온에서의 재료열화에 따라 성능을 감소시킬 뿐만 아니라 고온작동을 위하여 고가의 구성부품을 사용하여야 하기 때문에 스택제조비용을 상승시켜 SOFC의 경제성을 현저히 떨어뜨리는 요인으로 작용한다. 따라서 근래 들어 SOFC의 상용화를 위한 최대 이슈는 시스템의 안정성 및 경제성을 높이기 위해 작동온도를 낮추는 것이며 이를 위해 저온에서도 높은 성능을 낼 수 있는 구성소재 및 구조체를 개발하는 데 초점이 맞추어져 있다.

이에 본 고에서는 현재 SOFC 기술분야의 최대 관심사로 떠오르고 있는 저온형 SOFC 스택개발과 관련해 최근의 기술개발 동향을 소개하고 아울러 향후 상용화

수준의 경제성과 내구성을 확보하기 위해선 어떤 기술적 이슈들이 해결되어야 하는지에 대해 정리해보고자 한다.

2. SOFC 기술

현재 이슈가 되고 있는 저온형 SOFC가 개발되면 얻을 수 있는 소재 및 공정상의 장점을 정리해 보았다.

2.1 저기의 금속 분리판 적용 가능

현재 800°C 이상에서 작동하는 고온형 SOFC의 경우, 사용 가스의 혼합을 방지하는 금속 분리판은 전기적 물성 및 열기계적 물성이 우수한 내열금속을 사용한다. 이 때 내열금속에 포함되어 있는 크롬이 산화하면 분리판의 전기 전도도가 저하됨은 물론 증발된 크롬이 공기극의 성능을 저하시켜 스택의 장기성능을 떨어뜨리는 주된 요인이 된다. 따라서 산화를 억제할 수 있도록 저온 운전이 가능한 SOFC 기술을 도입하면 금속분리판 소재의 선택 폭이 넓어지는 것은 물론, 스택의 장기안정성을 확보할 수 있으며, 고온형에서 사용하는 Durnalloy와 같은 특수합금이나 LaCrO₃계 세라믹 분리판과 같은 고가의 분리판을 사용하지 않아도 되기 때문에 SOFC 스택의 제조단가를 현저히 낮출 수 있다.

2.2 구성소재간 열기계적 정합성 확보

SOFC 스택은 물질과 미세구조가 다른 이종물질(분리판/양극/전해질/음극)로 구성되어 있으며 운전환경이 고온의 극한 환경이기 때문에 구성 물질과 계면이 높은 열응력과 고온부식 환경에 노출되어 있다. SOFC의 운전 온도를 700°C 이하로 낮추면 이러한 열응력을 감소시킬 수 있어 구성 소재 및 부품 자체는 물론 구성 소재 및 부

품간의 계면에서도 현저히 향상된 열기계적 안정성을 얻을 수 있다. 특히, 밀봉재의 주성분으로 쓰이는 유리 기지상의 상변화를 억제할 수 있기 때문에 밀봉재의 열싸이클 내구성을 현저히 향상시킬 수 있다.

2.3 돌발 운전조건에 대한 저항성 향상

열응력과 마찬가지로 SOFC 스택이 갑자기 냉각되는 경우, 대부분의 구성 소재가 세라믹인 SOFC는 열충격 파괴에 노출되게 된다. 운전온도가 낮아지면 이러한 돌발 상황에서 발생하는 부품 내부 또는 부품간의 계면에 발생하는 열응력도 감소하게 된다. 그리고 연료극의 구성성 분인 금속의 산화-환원에 따른 부피변화가 단전지와 스택의 열기계적 안정성에 영향을 미치는 것을 고려할 때 낮은 운전온도는 금속의 산화 속도를 낮추어 부피변화를 감소시킴으로써 반복적인 산화-환원에 대한 스택의 열기계적 안정성을 증대하는 효과를 얻을 수 있다.

3. SOFC 단전지/스택 개발이슈

이러한 저온형 SOFC의 개발을 위해선 다음과 같은 소재 및 공정상의 새로운 기술적 수요에 대응하여야 한다.

3.1 고이온 전도성 전해질소재 개발

현재 고온형 SOFC에서 전해질로 주로 사용하고 있는 YSZ(yttria-stabilized zirconia)는 이온 전도도가 0.005 S/cm ($@600^\circ\text{C}$)로서 전해질의 두께를 초 박막화하지 않으면 저온에서 유효한 전도성을 확보하기 어렵다. 따라서 저온에서도 고성능 단전지를 구현하기 위해서는 전해질의 이온전도도가 기존의 YSZ보다 현저히 높은 새로운 전해질 재료의 개발이 필요하다. 한편, 결정립의 나노화에 의한 이온전도성 향상에 관한 계속되는 논란에도 불구하고 전해질 자체는 물론 실제 단전지상태에서의 성능평가를 통하여 나노 결정립 전해질의 잠재력을 타진해 볼 필요도 있다.

3.2 고활성 전극소재 개발

SOFC의 작동온도를 낮추는 것은 SOFC가 가지고 있는 높은 전기 변환 효율과 탄화수소계 연료의 내부개질

이 가능하다는 고유의 장점을 활용하기 힘든 문제에 직면하게 된다. 따라서 기존의 고온형에 적용하던 전극 재료와 비교하여 촉매 활성이 월등히 우수한 새로운 전극 재료의 개발이 필요하다. 따라서 600°C 에서도 탄화수소의 내부개질이 가능하며 이온화 촉매반응성이 우수한 CeO_2 계 및 perovskite계 구조의 양극 물질과 탄소 피복에 대한 저항성을 가지는 새로운 금속-세라믹 복합체 음극 조성의 개발이 우선적으로 요구된다. 특히 우수한 촉매 활성을 가지는 것 외에도 열적, 구조적 안정성이 뛰어나 장기적으로 우수한 성능을 유지할 수 있도록 하는 재료 공학적 조성 설계기술도 확보해야 한다.

3.3 고효율 전극구조

SOFC의 성능 손실은 크게 내부저항 손실과 분극 손실로 나누어진다. 내부 저항 손실은 이온이나 전자전도를 담당하는 구성상들의 고유 물성 및 각 구성상들의 연결도와 같은 구조적 요인에 의존한다. 특히 삼상 복합재료인 전극의 경우 전도성을 가진 상의 연결도는 자체 물성 보다는 전기저항 성분에 더 큰 영향을 미친다. 한편 분극 저항 손실은 연료 및 산화제의 기공채널을 통한 확산에 의해 지배되는 확산분극손실과 연료의 산화반응 또는 산화제의 환원 반응이 일어나는 삼상계면의 유효밀도에 의해 지배되는 활성분극손실로 나눌 수 있다. 따라서 분극저항 손실은 재료 자체의 고유물성과 함께 기공을 포함하는 구성상들의 미세구조에 대한 의존도가 지배적이다. 가장 이상적인 구조는 삼상이 모두 최대 연결도를 가지는 미세구조이며 이러한 구조의 전극개발이 고성능 전극개발의 핵심이다.

3.4 전해질 구조 미세화

나노 분말을 활용하여 구조 안정성을 가지는 미세 전극구조의 구성이 가능해지면 공정결함이 없고 결정립이 미세하면서도 치밀한 전해질 막을 비교적 낮은 소결온도에서 형성하는 것도 가능하다. 이에 따라 전해질 두께를 최소한으로 줄여 전해질 내부저항을 낮추고 단전지의 성능을 향상시킬 수 있다. 따라서 단전지의 구조 미세화는 구성층의 제조가능 두께의 한계를 극복하여 가장 얇은 구성층들을 결합할 수 있어 상대적으로 구성층의

특집

두께가 두꺼운 경우에 비하여 단전지 내부의 온도 구배를 줄여 열충격 저항성도 향상시킬 것으로 기대된다.

3.5 연료극의 열사이클 저항성 증진

세라믹과 금속의 복합체로 구성되어 있는 연료극의 열사이클 저항성 개선은 SOFC 연구개발의 최대 현안 중의 하나이다. 특히 운전온도에서도 일어나는 금속 결정립의 조대화는 열사이클에서의 부피변화를 증가시켜 단전지는 물론 스택의 내구성을 위협하는 주요 인자이다. 이에 대한 해결책이 다각도로 연구되고 있지만 현재로서는 다층 전극구조나 미세 기능층 구성을 통해 부분적인 개선을 하고 있는 상태이다. 그러나 이러한 미세 기능층은 운전온도에 장시간 노출되면 금속 결정립의 조대화에 의하여 삼상계면의 유효밀도가 감소하면서 활성분극손실이 증가하여 단전지 성능 열화의 요인이 된다. 따라서 열사이클에 강한 미세구조를 가지는 연료극 디자인의 개발이 연료극 자체는 물론 단전지의 성능 향상과 장기 성능 확보를 얻기 위한 최우선 과제중의 하나이다.

3.6 연료극의 산화/환원 싸이클 저항성 증진

현재 상용화를 시도하고 있는 SOFC에 적용되고 있는 연료극은 Ni-YSZ 복합재료이다. 이 연료극의 산화/환원 반응에 따른 부피변화는 Ni의 산화와 NiO의 환원에 의하여 지배되며 실제 부피 변화율은 Ni-YSZ 연료극의 미세구조와 구성상의 크기, 그리고 기공경에 의하여 지대한 영향을 받는다. 운전온도를 최종적으로 600 °C까지 감소시킬 경우에도 연료극내 Ni의 빠른 산화속도는 여전히 산화/환원 싸이클 중에 응력을 발생시켜 전해질 층이 손상되고 내부저항손실 또한 증가시켜 단전지와 스택의 성능저하 및 내구성을 위협하는 요소로 작용할 것으로 예상된다. 따라서, 확산분극저항을 상승시키지 않는 한계 내에서 미세한 기공구조를 구현하여 산화속도를 저연시킬 수 있는 연료극 디자인이 확보되어야 한다.

3.7 결함 제어를 통한 신뢰성 및 공정 재현성 향상

대부분이 세라믹 소재인 SOFC의 단전지 및 스택 내

부에 응력(열응력 포함)이 발생하면 공정결합의 크기가 임계 응력을 결정짓는 요소로 작용한다. 따라서 구성소재와 단전지는 물론 밀봉재에 이르기까지 공정결합을 최소한으로 줄여 각 구성소재의 물성 자체를 극대화하는 것이 SOFC의 장기성능과 내구성을 확립하는 우선적인 과제이다. 특히 연료극에서 조대한 공정결합은 부분적인 Ni 조대화를 촉진하여 산화/환원 싸이클이나 열사이클에 취약한 구조로 발전할 가능성이 매우 크기 때문에 연료극 지지형 SOFC의 성공 관건은 미세한 Ni 결정립을 균일하게 분포시키고 이들의 조대화를 방지할 수 있는 구조를 구현하는데 있다.

3.8 밀봉재의 열기계적 내구성 향상

현재 가장 진보된 형태의 밀봉재(미국의 SECA program)인 마이카계 복합 밀봉재는 마이카 결정 자체의 층상 파괴가 파괴에너지 흡수하는 장점을 가지고 있지만 비정질상이 유리되어 있는 층상 구조로 인하여 비정질상 자체의 변화에 의한 밀봉재의 특성 열화는 방지하기 어려운 단점을 가지고 있다. 또한 층상 파괴에 의한 균열이 대체로 결정 크기에 비례하기 때문에 밀봉재의 균열 복원을 위하여 고압의 압력이 필요하므로 다른 구성부품의 손상으로 이어질 가능성이 높다. 따라서, 열사이클에 의한 미세 균열이 발생하더라도 낮은 압력을 적용하여 밀봉구조를 복원할 수 있는 밀봉재의 개발이 열사이클이나 산화/환원 싸이클에 대응할 수 있는 현실적인 방안이다.

3.9 대면적화 및 동시소성 기술개발

단전지의 대면적화는 SOFC의 경제성 확보를 위하여 매우 중요한 이슈중의 하나이다. 단전지의 면적을 100 cm²에서 400 cm²로 대면적화 할 경우 스택에 사용되는 재료비는 거의 4분의 1 수준으로 저감되는 것으로 추정된다. 그러나, 동시소성을 활용한 대면적 단전지의 제조는 원료 및 제조 공정의 정밀제어를 요구하며 공정결합을 최소화하고 구성소재간의 정합성 향상을 위하여 기초 원료분말에 대한 물성 조정이 뒤따라야 가능하다. 다만 사용 용도에 따라 단전지 대면적화에 대한 요구가 다르기 때문에 동시소성에 의한 대면적 단전지의 제조기

술 개발의 경우는 요소기술은 개발하더라도 용도에 따른 세부적인 특성과 규격에 따라 연구의 확대는 유연하게 대처할 필요가 있다.

3.10 스택제조수율의 향상

소재 원천기술의 최종적인 시작품은 스택이 되어야 하며 구성소재 및 부품의 개발도 독립적인 소재와 부품 설계와 함께 스택 구성을 최종적인 설계변수로 고려하여야 한다. 최종적인 산물인 스택의 성능 보장과 제조수율 향상을 위하여 스택을 구성하는 소재 및 부품들의 치수 안정성 확보는 물론 스택 조립에 미치는 각 부품들의 영향을 정량적으로 측정 평가하여야 한다. 이를 위해서는 단전지의 치수 공차를 바탕으로 하여 스택구성품들의 변형량을 온도와 압력에 따라 평가하여 스택구성의 재현성과 스택성능의 신뢰성을 확보하는 것이 필요하다.

4. 향후 시장 전망

SOFC는 연료 프로세싱이 간단하여 compact 시스템의 구축이 가능하므로 특수 목적의 휴대용이나 가정용 전원 (RPG)은 물론 최근에는 초 저공해 자동차용 APU에 응용하는데 까지 그 범위를 확장하고 있다. 특히 열과 전기를 동시에 필요로 하는 수 kW급 소규모 발전 시스템 (RPG)의 경우 대량 생산에 의한 원가 절감 효과가 빨리 나타나고 있어 시장 진입이 가장 빠를 것으로 예상되고 있다.

현재 SOFC의 제작 단가는 0.2W/cm^2 의 성능, 5년의 수명 및 200MW/year의 생산 속도를 가정할 때 구성 요소 재료비 및 가공비를 포함하여 금속분리판을 사용할 경우 약 \$232-283/kW, 세라믹 분리판을 사용할 경우 약 \$500/kW로 예상되고 있다. 이러한 제작단가는 200 kW급 발전 시스템에 허용 가능한 스택 제작 단가기준 (\$824/kW)보다 낮은 가격으로 앞서 가정한 성능, 수명 및 생산 속도가 충족될 경우 경제성이 충분하다고 예상된다. 특히 소규모 가정용 발전 시스템 (RPG)의 경우에는 전기 가격에 상응하는 최대 허용 투자 및 운전보수비가 현재 보급단계에 와있는 PEMFC 시스템 (\$2,900-3,150) 보다도 높게 (\$3,376) 책정되어 있어 제작 단가의

제약이 비교적 덜하다는 장점이 있다.

한편 대형 발전시스템의 경우 고성능 터빈을 이용한 400MW급 발전에서는 가스터빈의 효율이 SOFC 시스템에 근접하는 것으로 나타나 이미 신뢰성을 확보한 가스터빈 기술을 고려할 때 시장진입이 당분간은 힘들 것으로 예상된다. 그러나 1MW급 또는 kW급 시스템에서는 현재 개발되고 있는 마이크로터빈의 효율이 25%로 낮아 SOFC 발전 시스템이 유리한 위치에 있다. 따라서 수백 kW급에서 수 MW의 분산형 전원의 경우 가스 터빈과 연계된 SOFC 발전 시스템 시장의 전망이 매우 밝으며, 2010년까지 신설 전원의 20%를 분산형 전원으로 대체한다면 1년에 약 10GW의 시장이 형성되리라 예상된다.

5. 끝말

현재 발전용, 수송용, 이동용 연료전지 시장에서 가장 큰 비중을 차지하고 있는 연료전지기술은 고분자전해질을 이용한 PEMFC 기술이다. 그러나 시스템 구성의 용이성 때문에 가장 먼저 상용화될 것으로 예상되었던 PEMFC 기술이 경제성, 에너지효율, 연료선택의 자유도 측면에서 기술개발의 한계에 도달함에 따라 SOFC 기술이 차세대 연료전지 기술의 강력한 대안으로 급부상하고 있다. 또한 소형 발전시스템으로 한정되는 PEMFC와 달리 SOFC는 크기나 형태, 용량에 대한 자유도가 높아 전력수요에 맞는 다양한 용량의 시스템 구성이 가능하므로 휴대용 전자기기의 초소형 전원으로부터 대형 복합 발전 시스템으로까지 시장이 확대될 가능성을 가지고 있다.

그러나 SOFC 기술은 대부분의 선진기술국들에서도 프로토타입을 제조하는 수준이며 특히 SOFC 시스템의 핵심인 스택구성부품들에 대한 소재/공정관련 원천기술이 확보되지 않아 실질적인 상용화에 많은 어려움을 겪고 있다. 따라서 국내의 SOFC 관련 연구기관과 기업들이 연계하여 고유의 원천기술을 확보한다면 선진기술국들과의 격차를 2-3년내에 극복할 수 있을 것이며 차세대 전략산업으로서의 국제경쟁력도 확보할 수 있을 것으로 기대한다.



이 해 원

- 1980년 서울대학교 요업공학과 졸업
- 1982년 서울대학교 요업공학과 석사
- 1990년 U. Florida 재료공학과 박사
- 1990년 美 Keramont Advanced Materials
- 1992년 Corp., R&D Manager
- 1992년 KIST 나노재료연구센터,
~현재 선임, 책임연구원



김 주 선

- 1990년 연세대학교 요업공학과 졸업
- 1992년 KAIST 재료공학과 석사
- 1998년 KAIST 재료공학과 박사
- 1998년 U. Pennsylvania, 연수연구원
- 1999년
- 1998년 KAIST 계면공학연구센터,
- 2000년 연수연구원
- 2000년 KIST 나노재료연구센터,
~현재 선임연구원



이 종 호

- 1988년 서울대학교 무기재료공학과 졸업
- 1990년 서울대학교 무기재료공학과 석사
- 1994년 서울대학교 무기재료공학과 박사
- 1994년 서울대학교 RETCAM, Post Doc.
- 1995년
- 1996년 독일 TU-Darmstadt, 전기화학
- 1998년 연구소 연구원
- 1998년 KIST 나노재료연구센터, 선임,
~현재 책임연구원