

# 고체산화물 연료전지의 개발 및 전망 (원통형 및 평판형 셀을 중심으로)

임탁형, 이승복, 송락현, 신동열 | 한국에너지기술연구원

고체산화물 연료전지(solid oxide fuel cell: SOFC)는 연료가 소유한 화학에너지를 전기화학반응에 의해 직접 전기에너지로 전환시키는 에너지 변환 장치이다. 고체산화물 연료전지의 특성은 고분자전해질형 및 용융탄산염형 연료전지 등 다른 연료전지에 비해 효율이 높고 공해가 적으며, 연료개질기가 필요 없고 복합발전이 가능하다는 것이다. 연료전지의 원리는 1839년 영국 Grove 경에 의해 최초로 수용액인 황산전해질을 통해서 보고됐으며, 고체산화물의 경우는 1899년 Nernst 이론의 발견 후 Baur 과 Preis 에 의해 최초로 고체산화물 연료전지 운전이 보고되고 있다. 이 연료전지는 기하학적인 모양에 따라 원통형, 평판형, 일체형 등으로 나누어진다. 이 가운데 원통형 연료전지 기술이 가장 많이 개발되고 있으며, 그 뒤를 이어 평판형이 빠른 속도로 연구개발이 진행되고 있다. 현재 기술개발을 보면, 구조별로 적용분야가 달라지고 있으며, 소형 발전시스템에서부터 중대형 발전시스템까지 여러 분야에서 기술 개발이 진행되고 있는 상황이다.

고체산화물 연료전지는 수용액을 전해질로 사용하는 저온형 연료전지인 인산형, 고온형 연료전지인 용융탄산염에 존재하는 부식문제, 고가 촉매, 전해질 제어, 개질기 도입 등의 단점은 없으나, 고체산화물 연료전지를 이루는 구성요소의 대부분이 세라믹으로 이루어져 있고 1000℃의 고온에서 운전되기 때문에 재료간의 반응문제 및 신소재 개발, 전극특성 향상, 스택 제조, 운전시험 평가 등이 주요한 연구 개발과제들로 대두되고 있다. 대부분의 문제들은 재료와 관련되어 있으며, 특히 고체산화물 연료전지를 실용화 및 실증하기 위해서는 장수명, 고성능의 우수한 대면적 전해질 및 전극 제조, 단전지 제조, 스택 제조 및 발전시스템 기술 등이 개발되어야 한다. 고체산화물 연료전지 발전시스템 기술은 분산 전원 등 대형발전시스템용, 주거용, 이동용으로 기술이 개발되고 있으며, 급속한 기술 발전으로 인해 수년 내에 상용화가 확실시 되고 있다.

이러한 관점에서 본 고에서는 고체산화물 연료전지 소재 기술을 중심으로 고체산화물 연료전지의 제조 기술, 국내외 기술 개발 현황, 적용분야별 발전시스템 구성 및 기술 개발 전망 등을 기술하였다.

## 1. 고체산화물 연료전지의 원리 및 종류별 특성

## 1.1 고체산화물 연료전지의 원리

고체산화물 연료전지는 그림 1에 나타난 바와 같이 중앙에 전해질이 있고, 양쪽에 전극이 있는 구조로 되어있다. 전해질은 치밀하여 가스를 투과시키지 않아야 하며, 전자전도성은 없으나 산소이온 전도성은 높아야 한다. 반면에, 전극은 가스가 잘 확산되어 들어갈 수 있는 다공질이어야 하며 높은 전자전도성을 가지고 있어야 한다. 이러한 치밀한 전해질을 사이에 두고 연료극에는 수소를, 공기극에는 공기 혹은 산소를 계속 흘려주어 산소 분압의 차이를 유지해 주면, 전해질을 통해 산소가 이동하려는 구동력이 형성된다. 그러나 전해질은 전자전도성이 없고 이온전도성만 가지고 있으므로, 공기극 쪽에서는 산소가 전자를 받아 산소이온으로 되어 전해질 막을 통과하여, 연료극 쪽에서는 산소이온이 전자를 방출하고 수소가스와 반응하여 수증기로 된다. 이러한 반응이 계속 일어나도록 산소와 수소를 계속하여 흘려주면, 전자는 전극을 통하여 외부의 도선으로 흐르게 된다. 이때 전기에너지가 발생하며, 전기에너지를 인출하여 사용하는 것이 고체산화물 연료전지의 작동원리이다.

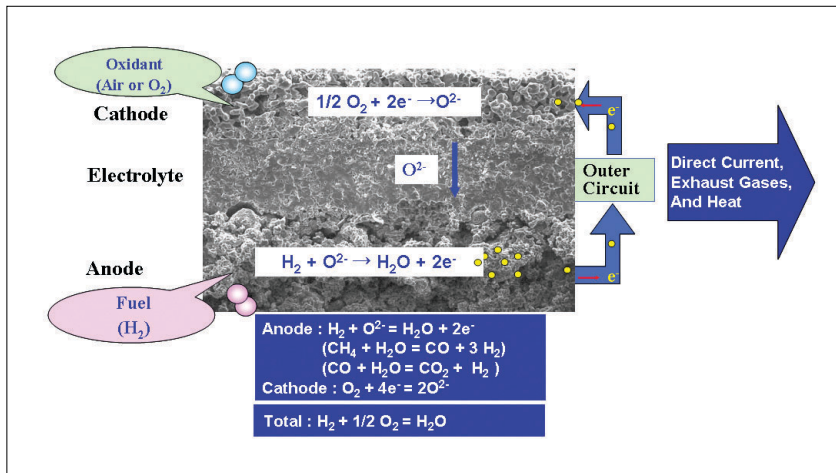


그림 1. 고체산화물연료전지의 전기화학적 반응과 작동원리

## 1.2 고체산화물 연료전지의 구조 특성

전해질인 yttria-stabilized zirconia(YSZ)의 전기전도도는 섭씨 1000°C에서 약 10<sup>-1</sup>S/cm이며, 이는 인산형 연료전지와 용융탄산염형 연료전지의 전해질에 비해 낮은 값이다. 그러므로 YSZ는 가능한 10~100μm의 박막으로 제조해 저항을 최소화 시키는 것이 중요하다. 그러나 전극 두께는 전류 흐름과 반응기체 흐름에 영향을 미치기 때문에 고체산화물 연료전지 구조에 따라 상이하게 설계돼야 한다. 전류가 전극면과 평행하게 흐르는 원통형 구조의 경우 어느 정도의 적당한 두께의 전해질이 필요하다. 이와는 다르게 전류가 전극면에 가로질러 흐르는 평판형 구조의 경우 전극 반응에 영향을 미치지 않는 범위 내에서는 되도록이면 박막인 경우가 좋다. 지금까지 개발되고 있는 고체산화물 연료전지 형태는 원통형, 평판형 및 일체형의 3 종류가 있으며, 원통형 및 평판형이 주로 많이 연구 개발되고 있다. 현재의 기술 개발 수준을 보면, 원통형 시스템이 가장 진보된 기술이며, 그 다음으로 평판형 기술이다. 원통형은 대형 시스템에 주로 적용되고 있으며, 소형 시스템의 경우 평판형도 가능하다. 표 1은 SOFC 본체구조의 특징을 개략적으로 요약해 놓았다.

표 1. SOFC 본체 종류별 특징

특 징	종 류			
	sealess tubular structure	segmented-cell-in-series structure	planar structure	monolithic structure
지지체	공기극	있음	없음	없음
내부 저항	높음	높음	중간	낮음
기체 밀봉재	필요 없음	필요함	필요함	필요 없음
전력 밀도	낮음	낮음	중간	높음

### 1.3 원통형 고체산화물 연료전지 본체 구성 및 특성

원통형 구조에는 단전지식 원통형 구조(Segmented-cell-in-series design)와 단전지식 원통형구조 (Sealess tubular design)의 2 종류의 기술이 주로 개발되고 있으며, 고효율 운전을 위해 개질기를 연료전지 본체 내부에 장착하거나 연료주입구 쪽 외부에 설치되는 형태로 시스템을 구성한다.

#### 1.3.1 단전지식 원통형 (Sealess tubular design)

단전지식 원통형 구조는 Westinghouse가 1980년에 개발하였으며, 현재 가장 기술이 앞선 구조이다. 이 구조의 단위전지시험은 7만 시간까지 행하여졌으며, 안정하고 우수한 성능을 나타내었다. 현재 100 kW, 200 kW 본체가 Westinghouse 의해 개발되어 있으며, MW 복합발전시스템이 개발되고 있다. 이 구조의 구성요소들은 한 끝이 막힌 지지체위에 얇은 층으로 형성되어 있으며, 각 원통관이 하나의 단전지이다. 이 구조의 제조순서는 먼저 다공성 공기극지지체의 원통 관을 만들고 이 위에 고밀도의 전해질을 입힌다. 이 때 공기극의 일부는 원통관의 길이 방향으로 띠 형태로 남겨 두며, 이 위에 연결재를 입힌다. 연료극은 전해질 표면 전체에 코팅한다. 표 2는 단전지식 원통형 구조에 사용되는 구성소재의 특성을 나타낸다.

그림 2는 단전지식 원통관 구조의 가스 매니폴드와 스택구조의 개략도를 나타낸다. 산화제는 연료전지의 상부를 통해 공급되며, 보조관을 통해 관 깊숙이 흘러 들어가 다시 연료전지의 상부를 통해 배출된다. 따라서 전극면을 기준으로 보면 산화제의 흐름은 결국 아래쪽에서 위쪽으로 흐르는 모양을 하게 된다. 연료는 전지의 바깥쪽 원통관의 벽면을 따라 아래에서 위쪽으로 흐르게 된다. 전기화학 반응을 끝낸 폐연료는 다공성 세라믹층을 통해 combustion chamber 로 이동하고, 여기서 폐산화제와 반응하여 열을 발생시킨다. 이 열은 전지에 공급되는 산화제를 예열하기 위해 사용된다. 폐가스는 약 900°C 온도에서 combustion chamber 로부터 배출된다. 전지내의 온도 분포는 연료전지의 전기화학 반응으로부터 발생된 열과 combustion chamber 의 폐연료 연소에 의해 발생된 열에 의해 유지되며, combustion chamber 의 폐연료로 인한 열의 기여는 약 15% 정도이다. 연료전지를 냉각시키기 위해서는 산화제를 과잉으로 공급하면 된다.

단전지식 원통형 구조의 가장 큰 특징 중 하나는 전지간 기체 밀봉제가 필요하지 않다는 것이며, 이로 인해 다른 연료전지에서 발생하는 세라믹 밀봉제 문제가 발생되지 않는다는 것이다. 이 구조에서 밀봉이 필요한 부분은 단지 두 군데로서, 하나는 연료 배출부위에서 산화제와 섞이는 것을 막기 위한 것이며, 이것은 산화제와 섞이게 되는 combustion chamber 로 연료가 이동하는 경로부분의 밀봉이기 때문에 전지성능에 치명적인 영향을 미치지 않는

표 2. 단전지식 원통형 고체산화물 연료전지 구성요소의 특성

구성요소	두께	기타 치수	기공율	재료
지지관	1.2mm	직경 : 1.5cm 길이 : ~2m	35%	LSM 공기극 또는 CaO-stabilized ZrO <sub>2</sub>
전해질	40 $\mu$ m		0%	10mol% Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -stabilized ZrO <sub>2</sub>
공기극	1.4mm		35%	10mol% SrO -doped LaMnO <sub>3</sub>
연료극	100 $\mu$ m		40%	Ni/Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Stabilized ZrO <sub>2</sub>
연결재	40 $\mu$ m	폭 : 9mm	0%	10mol% Mg -doped LaCrO <sub>3</sub>

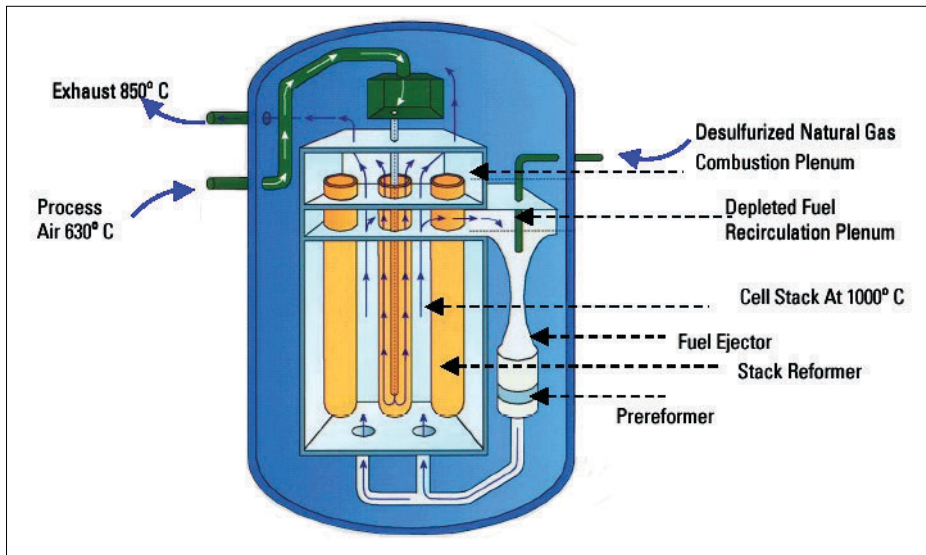


그림 2. 단전지식 원통관 구조의 본체 구성

다. 여기서의 기체 밀봉은 연료를 산화제로부터 분리하는 일종의 방패막 역할을 의미하기 때문에 폐 연료는 별 문제 없이 통과 될 수 있고 산화제는 combustion chamber 로부터 역류 되지 않을 정도의 다공성 세라믹이면 충분하다. 또 하나의 밀봉은 산화제 공급을 위한 보조관과 combustion chamber 사이에 존재해야 하며, 여기서의 밀봉 또한 전지성능에 중요한 영향을 미치지 않는다.

단전지식 원통형 구조의 다른 특징은 각각의 전지가 견고한 지지체위에 형성되어 있기 때문에 연료전지 자체가 튼튼한 세라믹 구조를 이루고 있다는 점이다. 이러한 구조는 열팽창에 대한 저항력이 우수하며, 열응력에 의해 발생하는 균열생성을 최소화 할 수 있다는 장점이 있다. 그리고 환원성 분위기에서 전지판 사이의 접촉이 이루어지

므로 전지판 연결이 용이하다. 반면에 단전지식 원통형구조는 전류흐름 경로가 길다는 단점을 갖는다. 전해질과 연결재의 경우 전류는 면과 수직방향으로 흐르기 때문에 전류흐름 경로는 짧다. 그러나 공기극과 연료극에서는 면 방향으로 전류가 흐르기 때문에 전류의 흐름 경로가 길게 된다. 전극에서의 긴 전류경로는 전지내부저항을 증가시켜 전지 성능을 감소시킨다.

게다가 공기극 지지판의 부피와 두께는 평판형의 것에 비해 크기 때문에 단 부피당 전력 밀도를 감소시키며, 두꺼운 지지판은 산소의 이동속도를 제한시킬 수 있다. 또한 EVD 공정 (Electrochemical Vapor Deposition)으로 제조되는 이러한 구조는 전해질과 연결재의 도핑원소 선택을 제한한다. 단전지식 원통형 구조는 다공성 공기극위에 각층이 연속적으로 형성되기 때문에 각 구성요소의 제조조건을 독립적으로 변화시키기가 어렵다. 전지의 구성은 다공성 공기극 제조로부터 시작되며, 연결재, 전해질, 연료극 순으로 합성된다.

현재까지 단전지식원통형 고체산화물연료전지는 길이 20~200cm 의 다양한 크기로 제조되어 왔다. 현재 이 구조의 단전지는 약 7만 시간 동안 성공적으로 운전되었으며, 전지성능 감소율은 1%/10,000 시간이었고, 전지성능은 450 mA/cm<sup>2</sup>에서 0.6 V 이었다. 현재 이 구조를 이용하여 연료전지 본체를 제작한 것을 보면, 연료로서 메탄 및 천연가스를 사용할 경우 내부개질기가 연료공급 전단계에 갖추어져 있다. 전단계 개질반응을 유도하기 위해 폐연료의 일부가 증기를 공급하기 위해 개질기로 회수되며, 폐가스로부터 발생된 열이 개질반응을 촉진시키기 위해 사용된다. 이 시스템을 이용하여 25 kW, 100 kW의 발전시스템 (미국 지멘스 웨스팅하우스-그림 3)이 개발되었고, 현재 MW 시스템이 개발 중에 있다.



그림 3. 미국 지멘스 웨스팅하우스의 100 kW CHP 시스템

### 1.3.2 단전지식 원통형 구조 (Segmented-cell-in-series design)

단전지식 원통형 구조는 1960년대 초에 개발되었으며, 하나의 원통관에 단전지가 직렬로 여러 개 배열된 구조를 갖는다. 셀은 얇은 띠 형태로 원통관 주위에 연결되며, 연결재가 연료극과 이웃 공기극 사이의 전기적 이음선 및 밀봉재 역할을 한다. 이 구조에서 있어서 연료는 원통관의 내부를 통해 이웃전지 사이로 이동하고 공기는 관의 바깥쪽으로 흐른다. 표 3은 2종류의 원통 횡호형 구조에 대한 구성요소들의 특성을 나타내고 있다. 전류흐름을 보면, 연료전지가 운전되는 동안 전류는 첫 번째 단위전지 공기극을 통해 전해질을 가로질러 흐른 후 연료극의 면 방향으로 흐른다. 그 다음 연결재 면에 수직 방향으로 흐른 후 공기극 방향으로 흘러가게 된다. 따라서 전류의 흐름 경로는 전극의 크기에 의존하게 되며, 전극의 내부저항에 의한 전지성능 손실을 감소시키기 위해 전지의 길이는 가능한 짧아야 한다. 실제 원통관 하나가 여러 개의 단위전지로 구성된 스택에 해당되며, 원통관 하나당 전지수는

20개 이하로 구성된다.

표 3. 다전지식 원통형 고체산화물 연료전지 구성요소의 특징

구성요소	밴드식 구조	
지지관	$Al_2O_3$	2-3 mm
전해질	$Y_2O_3$ -stabilized $ZrO_2$ (YSZ)	110-150 $\mu m$
공기극	Ni/YSZ	80-110 $\mu m$
연료극	Doped $LaCoO_3$	150-220 $\mu m$
연결재	NiAl	200-250 $\mu m$

<그림 4>에 나타낸 바와 같이 다전지식 원통형 구조의 모듈은 상층부에 연료 배분실과 연료 배출실의 2개의 방으로 구성되어 있다. 연료는 연료 배분실을 통해 각 스택으로 공급되고 원통관의 전지에서 전극반응을 일으킨 후 연료배출실로 이동한다. 산화제는 모듈이 하부에서 예열된 후 공급되며, 전극반응 후 폐산화제는 모듈의 중심부에 위치한 관을 통해 배출되며, 폐 산화제가 가지고 있는 열은 산화제를 예열하기 위해 사용된다. 이러한 구조는 일본 미쓰비시사에서 10 kW 규모로 개발되고 성공적으로 실증 시험되었다.

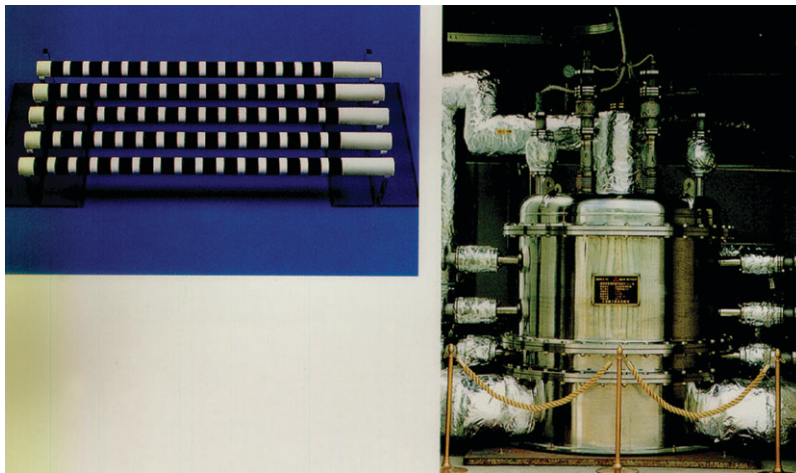


그림 4. 다전지식 (Segmented-cell-in-series design) 원통형 구조의 본체 구성

다전지식 원통형 구조는 단전지식 원통형 구조와 마찬가지로, 기계적 강도가 우수하고 열응력에 대한 저항성이 뛰어나, 높은 전기 내부저항, 지지관으로 인한 연료 확산 장애가 문제점으로 대두되고 있다. 단전지식 원통형과는 달리 다전지식 원통형 구조는 원통관 하부에서 기체 밀봉이 필요하며, 모듈 내에 스택 즉 원통관 수가 증가할수록 기체 밀봉의 문제성은 더욱 커진다. 다전지식 원통형 구조를 제조하기 위해 여러 공정이 개발되었으며, 1980년대 단전지식 원통형 구조가 개발되기 전까지 EVD법에 의해 전해질과 연결재를 제조하였다. 현재는 이 방법이 사용되지 않고 있으며, plasma spray 법을 주로 사용하고 있다. plasma 법에 의한 제조공정을 보면, 먼저 알루미늄 지지관 위에 연결재 부분의 기밀을 위해 plasma spray 법으로 치밀성 알루미늄아막을 입힌다. 플레임 spray 법으로 연료극을 코팅하고 전해질막은 plasma spray 법으로 입힌다. 그 다음 연결재와 공기극을 코팅한다. 이 방법으로

개발된 스택의 최고 규모는 10 kW 이며, 단전지의 최고 성능은 합성석탄가스로 0.67V, 400 mA/cm<sup>2</sup> 수준이다. 운전 동안에 발생하는 전지손실을 1000 시간당 약 2% 정도이라고 알려져 있다.

#### 1.4 평판형 고체산화물 연료전지 (Planar solid oxide fuel cell) 본체 구성 및 특성

이 구조는 인산형 연료전지와 용융탄산염형 연료전지의 구조와 동일하며, 최근에 여러 나라에서 연구개발이 활발히 진행되고 있다. 이 구조는 기하학적으로 매우 단순하며, 현재 25 kW급이 미국, 일본, 호주에서 개발되었으며, 독일은 20 kW급을 개발하고 있으며, 현재 각 국에서 100 kW 연료전지 본체 개발을 추진하고 있는 상황이다. 평판형 구조의 경우는 원통형에 비해 가스 밀봉 등의 문제로 주로 prereformer가 외부에 설치되어 있으며, 대면적 제조가 용이하지 않기 때문에 대용량 본체를 제조하기 위해서는 상당히 많은 기술이 개발되어야 한다. 평판형 구조는 구성요소들이 얇은 층으로 이루어져 있으며, 사각형 또는 원형 모양을 하고 있다. 일반적으로 평판형 연료전지에서 구조재 역할을 하는 것은 단위전지와 연결재이다. 자립막일 경우 단위전지의 두께는 200 $\mu$ m 이상이어야 하고, 요소들 가운데 전해질이 가장 두껍다. 전극자체가 지지체 역할을 하기도 하며, 이 경우 전해질의 두께를 매우 얇게 할 수 있다. 연결재는 산화제 및 연료를 분리시키고, 공기극과 연료극을 전기적으로 이어주는 역할을 한다. 또한 연결재는 가스채널을 갖고 있어 연료와 공기를 공급해 주기도 하는데, 전형적인 평판형 셀의 구조는 그림 5에 나타내었다.

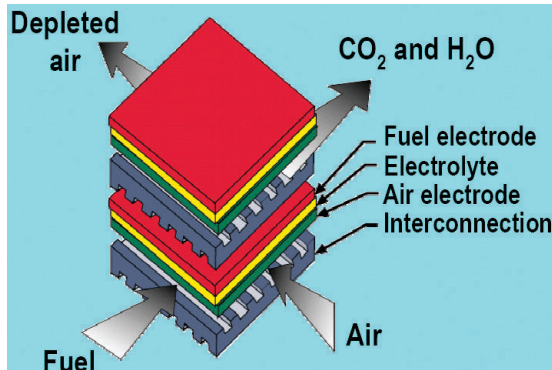


그림 5. 평판형(Planar) 고체산화물 연료전지 본체 구성

표 4는 평판형 연료전지에 사용되는 구성재료의 특성을 나타내며, 연구자들은 박막이면서 대면적인 구성소재를 만들기 위해 노력하고 있다.

평판형 연료전지는 각 구성요소들을 적층하여 스택을 만들며, 전류는 공기극, 전해질, 연료극, 연결재 순으로 각 구성요소들의 면에 수직 방향으로 흐른다. 그래서 원통형 구조에 비해 전류의 흐름경로가 짧다. 일반적으로 평판형 구조는 저온형 연료전지와 마찬가지로 반응가스를 공급하고 배출하기 위해 커다란 외부 매니폴드를 필요로 한다. 이러한 구조설계는 엄격한 기체 밀봉을 요구하며, 밀봉재는 전기적으로 절연체이어야 한다. 평판형 구조의 다른 형태는 내부 매니폴드 형이며, 기체의 흐름이 외부 매니폴드의 cross-flow와는 달리 counter-flow 이다. 또한 평판형의 기체밀봉 문제 등을 개선하기 위해 가스의 출구와 입구가 각각 연료전지 중앙부와 모서리 부분에 위치한

원형구조의 평판형 연료전지가 개발되고 있다.

표 4. 평판형 고체산화물 연료전지 구성요소의 특성

구 분	재 료	두 개
전해질	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -stabilized ZrO <sub>2</sub>	50 ~ 250 μm
연료극	Ni/YSZ	25 ~ 100 μm
공기극	Doped LaMnO <sub>3</sub>	25 ~ 100 μm
연결재	Doped LaCrO <sub>3</sub> 또는 고온 금속재	200 μm ~ 1mm, 2~6mm

평판형 구조의 장점은 원통형구조에 비해 높은 성능과 전력밀도를 소유한다는 것이다. 전류의 흐름이 구성요소의 면에 수직 방향으로 흐르기 때문에 전지 내부저항은 전지면적에 의존하지 않으며, 전지저항은 구성요소의 두께에만 의존하게 된다. 원통형에 비해 평판형 구조는 사각형, 원형, 육각형 등 다양한 형태로 쉽게 만들 수 있다. 또한, 평판형 구조의 전해질과 연결재는 고밀도로 독립적으로 제조될 수 있어, 원통형에서 발생할 수 있는 공소결의 문제점을 해결할 수 있다. 즉 공소결시 일어나는 구성요소간의 계면반응, 수축률 차이에 기인하는 문제점을 제거할 수 있다. 더욱이 평판형의 구성 재료는 개개의 제조공정을 통해 만들어지기 때문에 소재의 특성을 향상시키기 용이하며, 금속 연결재 등 재료 활용 범위가 증대된다.

평판형 구조의 문제점으로는 대면적 전해질 제조가 어려우며, 기체 밀봉제가 반드시 필요하다는 점이다. 기계적인 압축밀봉, 시멘트밀봉, 유리밀봉, 유리와 세라믹 복합 밀봉기술들이 개발되고 있으나, 여전히 많은 문제점을 갖고 있다. 기계적 압축밀봉의 경우 세라믹 구성요소에 불균일한 응력분포를 초래하여 균열을 발생시키기도 한다. 시멘트와 유리 밀봉은 1000℃의 온도에서 전지재료와 반응하여 스케일을 형성하기도 한다. 또한 평판형 구조에 있어 전기적 접촉이 문제가 되며, 구성요소간의 접촉 저항이 매우 높은 편이다. 그리고 제조 공정상 대면적 전해질 및 연결재 제조가 용이하지 않기 때문에 스택 크기가 제한될 수 있다.

지금까지 여러가지 크기의 평판형 단위전지와 스택이 제조되어 왔으며, 현재 제조된 평판형 전해질판의 최대 크기는 20×20 cm<sup>2</sup> 이다. 이보다 더 큰 크기로 전해질 판을 만드는 데에는 어려움이 많을 뿐만 아니라 제조된 전해질 판도 강도가 약해 다루기가 매우 어렵다. 이러한 문제로 평판형 연료전지 스택은 소형 전해질 판을 바둑판 무늬로 여러개 나열하고 적층하는 multi-array 방식을 취하고 있다. 평판형 구조의 면저항은 0.25~1.0Ω·cm<sup>2</sup> 값을 가지며, 초기 단계에서는 전지 면적이 증가함에 따라 전지 성능이 감소하는 결과를 얻는 경우가 많았다. 평판형 연료전지의 운전결과를 보면, 전지성능의 퇴화속도가 원통형에 비해 높고, 열 사이클의 저항성이 매우 취약하다고 보고되고 있다. 그러나 전지 성능면에서는 원통형에 비해 높으며, 현재 많은 수 kW규모의 스택이 성공적으로 운전되었으며, 현재 최고의 스택은 독일 울리히 연구소에서 개발된 5kW급 스택 (60장) 그림 6으로서 그 성능은 공기 및 수 소가스로 운전시 0.831 V/cell, 740 mA/cm<sup>2</sup> 이었다.

## 1.5 일체형 고체 산화물 연료전지 (Monolithic solid oxide fuel cell) 본체 구성 및 특성

일체형 구조는 최근에 개발된 구조로서 높은 밀도의 전력을 얻을 수 있다.





그림 6. 독일 울리히 연구소의 5kW급 평판형 SOFC 스택

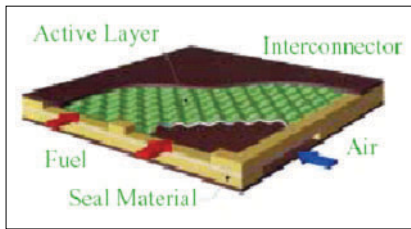


그림 7. 일본 미츠비시 중공업의 Mono Block Layer Built type (MOLB) 형태의 스택 개념도

현재 기술상의 어려움으로 인해 실험실에서 소규모로 연구되고 있는 상황이다. 이 구조에 있어서 전지의 구성요소들은 주름무늬구조(Corrugated structure)로 만들어진다. 이 구조의 연료전지는 두 종류의 층들로 구성된다. 하나는 연료극/전해질/공기극으로 이루어진 층이며, 다른 하나는 연료극/연결재/공기극으로 이루어진 층이다. 각층의 두께는 통상 200~300 $\mu$ m이다. 일체형구조는 coflow형과 crossflow형 두 가지로 나누어지며, 두 형태의 차이는 전력밀도 및 가스 매니폴드에 있다. Crossflow가 coflow에 비해 전력 밀도가 낮는데 비해 가스 매니폴드 제조가 용이하다는 특징을 갖는다.

일체형 구조의 핵심적인 특징은 전지 크기를 소규모로 할 수 있으며, 전력밀도가 매우 높다는 것이다. 전류 흐름은 전해질과 연결재 면에 수직으로, 그리고 전극의 면방향으로 매우 짧게 일어나기 때문에 전자흐름 경로가 짧아 전지 내부저항이 매우 작다. 일체형 구조는 원통형 및 평판형구조에 비해 전지성능이 매우 높다. 또한 전력밀도는 8 kW/kg 또는 4 kW/ℓ 로 계산되어진다.

지금까지 논의된 SOFC 스택의 구조 및 형태에 따라 SOFC개발 현황을 정리해 보았다. (원통형 SOFC: 표 5, 평판형 SOFC: 표 6)

표 5. 원통형 SOFC 개발현황

방식	종류	형상	발명기관	개발추진기관	개발현황	특징
단 전 지 식	공기극 지지체	원 통 형	Siemens- Westinghouse (미)	Siemens- Westinghouse(미) TOTO(일)	200kW급 발전용 개발(2002) 마이크로 tube형 APU 개발 중	가장앞선 기술 열사이클우수 전력밀도낮음 고온작동 (900℃ 이상)
		평 관 형	Siemens- Westinghou se(미)	Siemens- Westinghouse(미) Fuel Cell Technology(캐) NTT(일)	5kW급 가정용 개발(2002)	전류밀도높음 고출력 고온작동 (900℃)
	연료극 지지체	원 통 형	KIER(한)	KIER(한) Acumentrics(미)	2kW급, 5kW급 (가정용, APU 용) 개발(2003), Acumentrics	열사이클 우수 중저온작동 (600~800℃) 마이크로 tube 기술 개발
		평 관 형	KIER(한)	KIER(한) Kyocera(일)	1kW급가정용개 발(2003), Kyocers	전력밀도높음 중저온작동 (600~800℃)
	전해질 지립막식	원 통 형	Birmingham Univ.(영)	Acumentrics(2001,미) Birmingham Univ.(영)	1kW급 스택개발	열사이클우수 전력밀도낮음
다 전 지 식	마디형	원 통 형	Mitsubishi 중공업(일)	Mitsubishi중공업(일)	15kW급 발전용 시스템 개발 (2000)	열사이클우수 전력밀도낮음 고온작동
		평 관 형	Rolls- Royce(영) Mitsubishi 중공업(일)	Rolls-Royce(영) Mitsubishi중공업(일)	5kW급 개발 (2003)	열사이클우수 고온작동 전력밀도보통 내부개질

## 2. 국내외 고체산화물 연료전지 시장 규모 및 기술 개발현황

3세대 연료전지의 세계시장 규모는 2010년경 약 12000MW ~ 22000MW 정도로 예측하고 있다.(미국, Allied Business Intelligence사, 2001) 국내시장의 경우 자가발전 설비, 노후 화력 대체 및 기력 발전 설비를 대체하는 경우, 자가발전설비 및 기력설비는 각각 1%와 노후 화력 설비의 10%를 연료전지 설비로 대체가 가능하다면 2010년까지 약 1500MW 정도로 추정하고 있다.(전력연구원 보고서, 2000)

고체산화물 연료전지는 크게 세 가지의 적용분야로 개발되고 있다. 가장 많이 개발하고 있는 것은 수백 kW급 이상의 중대형 정지형(stationary application) 분산전원 시스템이며, 그 다음은 수십 kW급 이하의 가정용(residential

표 6. 평판형 SOFC 개발현황

스택 제작 기관	국가	스택 구조		작동 온도	개발현황
		단위전지 형태	연결 재료		
Ztek	미국	원반형	-	900~1000℃	가압 25kW module 250kW FC/GT system
Chubu 전력 Mitsubishi중공업	일본	일체형 (Mono block layer built type)	LaSrCoO <sub>3</sub>	1000℃	5kW module 25kWsystem
Tokyo Gas	일본	평판형 (전해질 자립막식)	metal	1000℃	1.5kW stack
Sulzer Hexis	스위스	원반형 (전해질 자립막식)	Cr <sub>5</sub> FeY <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	950~1000℃	1kW급 가정용 system
SOFC <sub>0</sub>	미국	평판형 (일체식)	LaCrO <sub>3</sub>	800~1000℃	천연가스 및 액체연료 사용 2kW급 stack
Allied Signal	미국	평판형 (일체식, 연료극 지지형)	metal	600~800℃	군용 500W system
Ceramic Fuel Cell	호주	평판형 (전해질 자립막식)	Zirconia with electric feed-through and printed	900~1000℃	1kW stack
Riso 연구소	덴마크	평판형 (전해질 자립막식)	La(Sr)Cr(V)O <sub>3</sub>	1000℃	0.5kW stack
Julich 연구소	독일	평판형 (연료극 지지형)	Ferritic Steel	750~950℃	10kW(20×20cm <sup>2</sup> ) stack
Siemens	독일	평판형 (multiple cell array)	CrFeY <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	850~950℃	20kW system 1999 개발 중단

application)이다. 중대형 분산전원의 대표적인 것은 미국과 독일의 Siemens-Westinghouse사의 220kW급(SOFC 200kW, micro-gas turbine 20kW 그림 8) 복합발전 시스템이며, 일본의 미츠비씨사, 전원개발사, TOTO사 그림 9, 호주의 Ceramic Fuel Cell사 등도 선두그룹에 속한다. 주로 수백 kW의 중형에서부터 수 MW 이상의 대형 시스템을 목표로 개발을 진행하고 있다. 이 시스템은 고체산화물 연료전지 단독 시스템 또는 효율을 더욱 증가시키기 위해 가스터빈-증기터빈을 결합한 복합 발전시스템으로 개발되고 있다.

가정용 고체산화물 연료전지 기술은 스위스 Sulzer Hexis사<그림 10>, 캐나다의 Fuel Cell Technology사 및 Versa Power System 사, 미국의 Acumentrics사<그림 11> 등이 개발을 추진하고 있으며, 수 kW급 평판형 또는



그림 8. 미국 지멘스 웨스팅하우스의 220kW급 SOFC/가스터빈 하이브리드 시스템

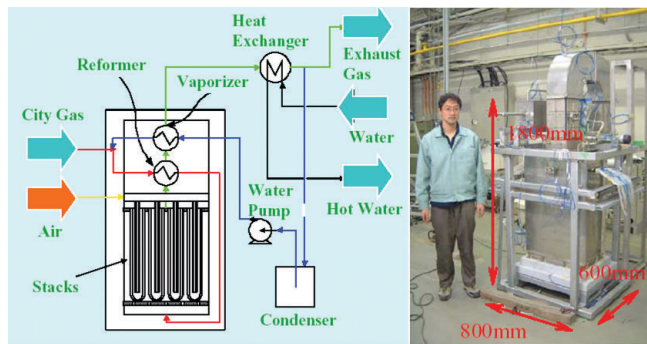


그림 9. 일본 토토의 Thermal self-supporting module system

원통형 소형 열병합 발전 시스템을 개발하여 수년 내 상용화를 목표로 실증시험 운전을 추진하고 있다. 휴대용 및 차량용 보조 전원으로도 10kW급 이하의 고체산화물 연료전지 기술이 개발되어지고 있다. 전지의 작동 온도가 높음에도 불구하고 다양한 연료를 직접 사용할 수 있다는 장점으로 인해 기술 개발이 진행되고 있으나, 기동시간 및 열 사이클 저항성 개선, 연료처리 시스템 등 많은 기술적인 문제들이 해결되어야 한다.

일본의 고체산화물 연료전지 연구는 NEDO의 지원 하에 뉴선샤인 프로그램간 기업간의 프로그램을 통해 기술 개발 및 선진 기술 도입이 진행되고 있다. 유럽은 독일을 중심으로 한 유럽연합의 대체에너지 개발 프로그램과 각



그림 10. 스위스 Sulzer Hexis의 RPG용 SOFC 시스템

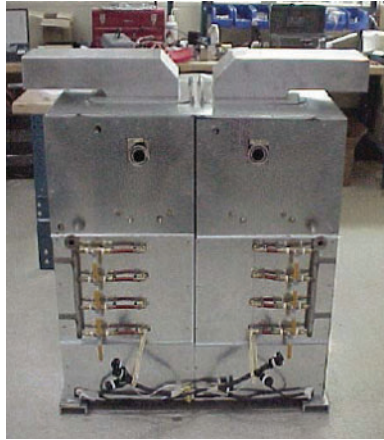


그림 11. 미국 Acumentrics의 5kW급 APU SOFC core module

국의 독자 프로그램을 통해 기술 개발이 추진되고 있으며, 호주에서는 고체산화물 연료전지 전문회사인 Ceramic Fuel Cell사를 설립하여 독자기술 개발을 진행하고 있는 상황이다.

국내에서의 고체산화물 연료전지 기술은 1994년에 대체에너지 기술 개발 프로그램으로 진행되어 왔으며 KIER(한국에너지기술연구원), KIST(한국과학기술연구원), 한국전력연구원 등에서 원통형 및 평판형 고체산화물 연료전지 스택제조를 위한 연료극 지지체 개발에 관한 연구가 이루어지고 있다. 그리고 대학 및 일부 기업 등에서 기초 기술 개발, 요소 기술 개발, 단전지 기술, 스택 기술 개발에 대한 요소 기술 연구가 진행되고 있다. 현재 KIER에서는 차세대 신기술 개발 사업의 일환으로 가스터빈/연료전지 혼합형 고효율 발전 시스템을 개발 중이며, KIST에서는 NRL 사업으로 kW급 연료전지를 개발하고 있다. 그밖에 자동차 보조 동력원으로서의 연료전지 분야는 현대자동차 등에서 추진하고 있고 세라믹기술원 등에서도 자체적인 연구를 수행하고 있다.

1997년 쌍용중앙연구소가 개발을 중단한 후 국내 고체산화물 연료전지 기술 개발은 어려운 국면에 직면한 적이 있으나, 이러한 상황 속에서도 연구소 등을 중심으로 고체산화물 연료전지의 기반기술의 개발이 진행되어 왔으며, 성능 면에서도 선진국에 뒤지지 않은 기초적인 연구결과를 확보하고 있는 상태이다. 또한 연구 설비, 연구인력 면에서의 연구기반이 확보되어 있으며 연구소 및 대학의 연구결과 논문 발표 수의 증가와 연구인력 양성이 활발히 진행되고 있어 국가적인 차원에서 종합적이고 체계적인 연구개발 사업추진 시 선진국 기술수준에 빠른 시일 내 도달 가능할 것으로 판단된다. 그러나 요소기술 및 소형 스택 기술은 개발되었으나, 스택의 대형화, 시스템 개발 분야 기술은 선진국보다 많이 뒤져있으며, 체계적인 스택 및 시스템 개발은 진행되지 않고 있는 상황이다. 또한 요소기술에서도 전지의 대형화 및 양산화 기술이 부족한 상황이며, 연결재 기술에 대한 연구가 매우 필요한 것으로 사료된다.

### 3. 결 론

고온형 고체산화물 연료전지는 연료전지 가운데 효율이 가장 높고 환경 특성이 우수하며, 저온형 연료전지에서 발생하는 여러 가지 운전상의 문제점을 최소화 시킬 수 있는 발전시스템이다. 현재 고체산화물 연료전지 발전시스

템은 주로 분산전원용, 대형 발전소용으로 기술이 개발되어 왔으나 최근에는 가정용 소형 열병합 발전시스템, 자동차용 등 이동전원용으로도 많은 연구 개발이 진행되고 있다. 정지형의 경우 가스터빈, 증기터빈 발전과 연계한 복합발전 시스템을 목표로 하고 있다. 이 시스템의 경우 전기적 효율이 약 70%에 가까울 것으로 예측되고 있으며, 이것은 기존의 화력발전소에 비해 매우 높은 값이다. 현재의 기술 개발 추이로 보아 원통형 구조의 고체산화물 연료전지가 중형, 대형 발전시스템의 시장에 먼저 진입을 할 것으로 예상되며, 이어서 평판형 구조의 발전시스템이 중소형 발전시스템 분야의 이용을 거친 후 대형시스템에 응용될 것으로 예상된다.

현재의 기술 개발 속도로 보아 2005년 이내에는 MW급 고체산화물 연료전지 발전 시스템이 실용화 될 것으로 판단되며, 미국은 자체 기술을 확보하고 있기 때문에 기술적인 우위를 강점으로 내세워 일본, 독일 등으로부터 투자 유치를 본격화하고 있다. 또한 미국 Siemens-Westinghouse사는 전력회사, 가스회사, 에너지 관련 회사 등을 중심으로 연간 수백 MW 이상의 고체산화물 연료전지 발전 시스템의 생산을 목표로 세계 최대의 고체산화물 연료전지 제조 전문회사의 설립을 추진 중에 있으며, 이를 포함하면, 전 세계적으로 고체산화물 연료전지 발전시스템 제조를 위한 전문회사는 현재 수십 개에 달하고 고체산화물 연료전지의 생산량은 더욱 늘어날 전망이다. 하지만, 선진국들은 고체산화물 연료전지 발전 기술을 전략적으로 보호하고 있기 때문에 이를 고려하여 국내에서는 고체산화물 연료전지의 시장 진입에 따른 대책을 빠른 시일 내에 세워야 할 것으로 판단된다.

최근, 우리나라는 고체산화물 연료전지의 투자비 절감과 실용보급 조기 정착을 위한 시장 진입 모델형 개발로 실용화 기반을 확보하고자 하고 있으며, 최종 목표인 중대형 발전시스템 기술 개발에 앞서 중간단계로서 소형 발전 시스템(예, 2kW급, 5kW급)의 독립전원, 가정용 발전 시스템, 자동차 보조동력원 등으로 제품화 전략을 마련하고 있다. 이를 위해서는 실용보급 촉진을 위한 경제성 확보를 위하여 구성요소 대형화 및 고성능화 기술 개발 병행과 제조 인프라 구축이 필요하며, 개발 기술의 조기 시장진출을 위하여 구성요소 제조 및 스택 제작을 위한 유망기업 참여와 실용 보급 및 상용화를 유도해야 한다. 또한, 시스템 세부 핵심기술 간의 각 연계성을 극대화하고 궁극적 목표 달성을 위하여 매진하여야 하며, 조기에 실용화가 가능하나 핵심기술과 중장기적 연구가 필요한 기반기술을 구분하여 수행하여야 할 것으로 사료된다.

## ❖ 참고 문헌

- [1] S.C. Singhal and M. Dokiya, Editors, Solid Oxide Fuel Cells VIII (SOFC VIII), The Electrochemical Society, Pennington, NJ (2003).
- [2] N.Q. Minh, J. Am. Ceram. Soc. 76 (1993), p. 563.
- [3] N.Q. Minh and T. Takahashi, Science and Technology of Ceramic Fuel Cells, Elsevier, Amsterdam, The Netherlands (1995).
- [4] K. Kendall, N.Q. Minh and S.C. Singhal In: S.C. Singhal and K. Kendall, Editors, High Temperature Solid Oxide Fuel Cells: Fundamentals, Design and Applications, Elsevier, Oxford, UK (2003).
- [5] S.C. Singhal In: S.C. Singhal and M. Dokiya, Editors, SOFC VI, The Electrochemical Society, Pennington, NJ (1999), p. 39.
- [6] M. Prisca, T. Alston and K. Kendall In: U. Stimming, S.C. Singhal, H. Tagawa and W. Lehnert, Editors,

SOFC V, The Electrochemical Society, Pennington, NJ (1997), p. 619.

[7] Handbook of Fuel Cells Fundamental Technology and Applications Volume 4 (2001).

[8] T. Ishihara, K. Sato and Y. Takita, J. Am. Ceram. Soc. 79 (1996), p. 913.



**임 탁 형**

· 한국에너지기술연구원 신에너지연구부 선임연구원  
· 관심분야 : 고체산화물연료전지, 시스템 통합  
· E-mail : ddak@kier.re.kr



**이 승 복**

· 한국에너지기술연구원 신에너지연구부 선임연구원  
· 관심분야 : 고체산화물연료전지, 리튬 2차전지  
· E-mail : sblee@kier.re.kr



**송 락 현**

· 한국에너지기술연구원 신에너지연구부 책임연구원  
· 관심분야 : 연료전지  
· E-mail : rhsong@kier.re.kr



**신 동 열**

· 한국에너지기술연구원 신에너지연구부 책임연구원  
· 관심분야 : 연료전지, 박막공정  
· E-mail : drshin@kier.re.kr