

고체산화물 연료전지 연구개발 기술동향

글 _ 윤경중, 이종호, 손지원, 김병국, 제해준, 이해원
한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터

1. 서론

연료전지는 전기화학반응을 통하여 연료의 화학 에너지를 전기 에너지로 직접 변환시키는 장치로서 일반적인 열기관에 비하여 에너지 변환 효율이 월등히 높기 때문에 연료 소비와 오염물질 및 온실가스 배출을 크게 감소시킬 수 있다. 일반적으로 연료전지는 수소 연료를 사용하여 작동하는 것으로 알려져 있으며 수소경제 구축을 위한 기반시설이 갖추어지기까지는 상용화가 제한될 것으로 인식되어 왔다. 그러나 600~1000°C의 고온에서 작동하는 고체산화물 연료전지(SOFC)는 수소뿐만 아니라 천연가스, 프로판가스, LPG 등의 기존 탄화수소계열 연료와 바이오 연료 등 미래 대체 연료까지도 고가의 외부 개질기 없이 내부 개질을 통하여 자유롭게 사용할 수 있기 때문에 수소 기반시설 구축 여부에 상관 없이 폭 넓은 상용화가 이루어 질 수 있다. 또한 SOFC 자체의 연료 변환 효율이 45~65%에 달하며 양질의 폐열을 활용한 열병합 시스템을 통해서 85% 이상의 시스템 효율을 얻을 수 있기 때문에 제1세대 인산형 연료전지(PAFC), 제2세대 용융탄산염형 연료전지(MCFC)의 뒤를 잇는 제3세대 연료전지라 불리우며 차세대 친환경 전기 발전 방식으로 주목을 받고 있다.

SOFC 단전지는 다공성의 양극과 음극, 그리고 그 사이에 위치하는 치밀한 구조의 전해질로 구성되며 양극에는 공기, 음극에는 수소 또는 탄화수소 계열의 연료가 공급된다. 양극과 음극이 외부 회로로 연결될 경우 양극과

음극의 산소 분압차로 인하여 양극에서 산소가 환원되고 산소 이온이 이온 전도체인 전해질을 통해서 음극으로 전도된다. 음극에서는 산소 이온이 H₂ 또는 CO 연료와 반응하여 H₂O, CO₂, 그리고 열을 발생시키며 이 때 방출된 전자는 외부 회로를 통하여 양극으로 이동하는 과정에서 전기적 일을 실행한다. 이러한 단전지들을 연결체로 상호 연결하여 스택을 형성하며 전력 수요에 따라 kW에서 MW급 이상까지 광범위한 용량의 시스템을 구성할 수 있기 때문에 SOFC는 휴대전원부터 가정용, 건물용, 수송용, 대규모 발전용까지 다양한 응용 범위를 갖는다.

현재 SOFC 개발에 있어서 주된 기술적인 장벽은 고온 작동으로 인한 높은 소재/제조/유지 비용과 장기 운전 및 열사이클 시 낮은 신뢰성 등이다. 최근 작동 온도를 크게 낮추며 성능과 내구성을 향상시킬 수 있는 소재 및 공정 기술들이 빠른 속도로 개발되고 있기 때문에 이로 인하여 스택 단가가 절감될 뿐만 아니라 주변 보조설비의 구성이 간소화되고 열사이클로 인한 부담이 감소하고 있다. 이러한 기술 발전의 결과로 SOFC의 사용범위가 가정용, 건물용, 대형발전용뿐만 아니라 휴대용, 수송용 보조전원까지도 확대될 수 있을 것으로 예상된다. 본 원고에서는 SOFC의 종류, 부품소재 및 공정, 그리고 해외 기술 동향 등을 정리해 보고자 한다.

2. SOFC의 종류

2.1. 단전지 형태에 따른 분류

SOFC 단전지는 그 형태에 따라 원통형과 평판형으로 구분된다. 장기안정성 실증이나 시스템 기술 측면에서는 원통형이 진보된 상태에 있으나 출력 밀도가 높은 평판형이 추격하는 양상을 띠고 있다. 원통형 단전지의 경우 양극 또는 음극 튜브를 지지체로 하여 전해질과 전극, 세라믹 연결재가 그 위에 형성되고 여러 단전지가 결합되어 단전지 뭉치(bundle)를 형성한다. 튜브 내의 공간으로 공기 또는 연료가 공급이 되기 때문에 밀봉에 관련된 문제가 적고 열기계적 이슈들을 제어하는 것이 상대적으로 용이하다. 하지만 스택을 형성하게 되면 셀 표면 중 일부 분만을 통해서 셀 간의 전기적 연결이 이루어지므로 in-plane 전류 경로가 길어서 내부 전기저항이 높다. 또한 기계적 내구성을 확보하기 위해서는 튜브의 두께를 낮추는데 한계가 있으므로 높은 전력밀도를 얻기가 어렵다. 원통형 SOFC 개발은 미국의 Westinghouse(현재 Siemens)에 의해 시작되었으며 다공성 양극관을 지지체로 하여 100kW급 이상의 대용량 시스템 구축을 목표로 연구가 진행되어 왔다. 이후 평판형 High Power Density(HPD) 디자인, 삼각기둥 형태의 공기 채널을 사용하여 원통형과 평판형의 장점을 결합한 Delta-9 디자인 등을 개발하여 내부 전기저항을 줄이고 출력밀도를 높여 왔다. 미국의 Acumentrics는 시작과 정지 환경에서 열구배를 최소화하기 위하여 직경 15mm, 길이 40cm 가량의 작은 크기의 원통형 셀을 사용하여 5-10kW급 모듈 스택을 개발하고 있다. 일본에서는 여러 업체들이 원통형을 개발하고 있는데 이 가운데 Toto는 소형 튜브를 사용하여 500°C에서 작동하며 시동시간이 5분 이내인 50W-1kW 범위의 휴대용 전원을 개발하고 있다.

평판형의 가장 큰 장점은 전류가 셀에 수직인 방향으로 흐르기 때문에 in-plane 저항으로 인한 성능 손실이 매우 작다는 것이다. 지난 10여년간 평판형 단전지는 약 10배에 가까운 출력 향상을 이루었으며 유효 전극 면적 또한 700cm²에 이르는 대면적화가 동시에 이루어지고 있다. 또한 원통형에 비하여 스택을 조밀하게 제작할 수 있기 때문에 단위부피당 출력밀도가 매우 높다. 덴마크의 Topsoe Fuel Cell에서는 Riso National Laboratory의 셀을 사용하여 2.4kW/liter의 부피당 출력 밀도를 갖는

스택을 제작하였다. 원통형에 비하여 다양한 세라믹 공정 기술을 적용할 수 있다는 점도 평판형의 장점 가운데 한가지이다. 하지만 밀봉에 관련된 열기계적 특성이 취약하고 열사이클 시 안정성이 낮다. 이러한 단점을 보완하기 위하여 스위스의 Hexis는 디스크형 평판형 셀을 제작하고 있다.

2.2. 지지체 종류에 따른 분류

기계적 강도를 확보하기 위한 지지체의 종류에 따라서는 전해질 지지형, 음극 지지형, 양극 지지형, 그리고 금속 지지형으로 분류된다. 1980년대와 90년대의 1세대 평판형 SOFC는 전해질 지지형으로 개발되었다. 전해질의 두께가 최소한 200 μ m 이상이기 때문에 내부 전기저항을 낮추기 위해서 900°C 이상의 고온에서 작동하게 된다. 산화-환원 사이클에 크게 손상을 받지 않는 장점을 갖기 때문에 현재까지도 CFCL, Staxera, Bloom Energy 등에서 이 디자인을 사용하고 있다. 하지만 많은 셀 개발자들은 1990년대 중반 이후 음극 지지형을 채택하고 있다. 음극 지지형은 1993년 독일의 울리히 연구소(FZJ)에서 개발되었으며 가장 큰 장점은 낮은 내부 전기저항과 높은 출력밀도를 얻을 수 있다는 점이다. 전해질의 두께를 낮출 수 있고 두꺼운 음극 지지체는 금속 Ni 때문에 매우 높은 전기전도도를 가지므로 내부 저항으로 인한 성능 손실이 매우 작다. 따라서 작동 온도를 낮추고 저가의 합금 분리판을 사용할 수 있으므로 SOFC의 경제성을 획기적으로 향상시킬 수 있다. 하지만 음극 지지체 내에서 니켈의 부피 변화 때문에 산화-환원 사이클에 취약하다. Acumentrics는 음극 지지체를 사용하여 원통형 SOFC를 개발하고 있다. 반대로 양극 지지형은 음극을 얇게 형성할 수 있으므로 산화-환원 사이클에서 안정성을 갖지만 치밀한 전해질 구조를 얻기 위해서 양극 지지체와 전해질을 동시에 고온 소결할 경우 두 물질간의 화학 반응이 문제가 되기 때문에 일반적인 세라믹 분말 공정을 사용할 수 없다. 또한 세라믹 양극 지지체의 전기전도도가 금속인 Ni로 이루어진 음극에 비해 낮고 가스 이동 측면에서도 두꺼운 양극 내 O₂-N₂의 기체 확산계수가 낮은 음극의 H₂-H₂O에 비하여 낮기 때문에 출력 밀도에 한계

가 있다. Siemens와 Toto가 사용하는 형태이다. 작동 온도가 650°C 이하로 낮아지게 되면 금속 지지체의 사용이 가능하다. 금속 지지체의 가장 큰 장점은 낮은 재료 비용과 좋은 기계적 성질이다. 또한 지지체의 높은 열 전도도 때문에 셀 내에서의 온도 구배가 큰 문제를 일으키지 않는다. 아직까지 성숙한 기술은 아니지만 이러한 장점들 때문에 Ceres Power, Argonne National Laboratory, Riso National Laboratory 등에서 연구가 진행되고 있다.

3. SOFC 스택의 형태

SOFC 단전지는 필요한 용량에 따라 연결재, 밀봉재와 함께 적층되어 스택을 형성하는데 그 디자인은 셀 형태와 가스 흐름 방향에 따라 결정된다. 일반적으로 원통형 셀들은 스택에서 직렬과 병렬로 연결되어 bundle을 형성한다. 평판형의 경우 일반적으로 직렬로 연결되지만 추가로 병렬로 연결되는 경우도 있는데 병렬 연결이 사용되는 이유는 한 셀에 문제가 생겼을 때 전체 스택에 미치는 영향을 최소화하기 위해서이다. 평판형 스택의 가스 매니폴드는 내부형과 외부형 디자인으로 구분된다. 외부형 가스 매니폴드는 셀, 분리판과 따로 제작되어 별도로 장착되며 개념적으로는 간단하지만 비용이 많이 드는 편이고 가스 흐름 방향이 연료와 공기가 직각으로 이동하는 cross-flow에 제한된다. 내부형 가스 매니폴드는 분리판의 일부로 형성되어 스택 내부에 존재하며 밀봉이 상대적으로 용이하고 가스 흐름 방향을 자유롭게 설계할 수 있기 때문에 많은 연구자들이 선호하고 있다. 이는 또한 미국의 Delphi 디자인과 같이 셀이 금속 카세트에 부착이 되는 형태로도 제작이 가능하다. 가스 흐름의 형태는 온도와 전류의 분포에 큰 영향을 미친다. Topsoe Fuel Cell의 연구 결과에 따르면 co-flow와 counter-flow 형태가 cross-flow에 비해서 낮은 열 구배와 높은 전력 밀도를 보였으며 최대 전력 밀도는 counter-flow 형태에서 얻어졌는데 이는 cross-flow에 비해서 약 80% 정도 높은 수치였다¹⁾. 따라서 내부형 매니폴드가 스택의 성능과 열 관리 측면에서 유리한 것으로 여겨진다.

4. 부품소재 및 공정

4.1. 양극

800°C 이상의 온도에서 작동되는 고온용 양극 물질로서는 전자전도체인 perovskite 구조의 LSM($\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$)과 이온전도체인 fluorite 구조의 YSZ(yttria-stabilized zirconia) 복합체가 가장 널리 사용되고 있다. 복합구조 전극의 경우 전기화학적 성능은 전자전도체-이온전도체-기공으로 이루어진 삼상의 분포와 그 계면의 길이에 의해 크게 영향을 받기 때문에 미세구조와 조성을 최적화하여 분극저항을 최소화하기 위한 연구가 폭 넓게 진행되어 왔다. 전극 미세구조 분석의 중요성이 강조됨에 따라 Northwestern University의 Scott A. Barnett 교수 연구팀이 FIB(Focused Ion Beam)와 SEM(Scanning Electron Microscopy)를 이용한 전극의 3차원 구조 분석 기술을 Nature Materials에 발표한 이후²⁾ 많은 연구자들이 삼상 계면의 길이, 각 상의 부피 분율, 연결도 및 tortuosity 등 전극 성능을 결정하는 미세구조 특성을 정량화하기 위한 분석 기술을 연구하고 있다^{3,4)}. 작동 온도를 낮추기 위해서는 전극 표면 전체에 걸쳐서 산소 이온과 전자가 반응할 수 있는 혼합전도체 양극 소재가 요구된다. 이러한 소재에는 LSCF ($\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_3$), LSC ($\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$), LSF ($\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{FeO}_3$), BSCF ($\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_3$) 등이 있는데 이들 대부분의 혼합전도체 전극소재들은 공정 및 작동 온도에서 YSZ 전해질과 화학적으로 반응하기 때문에 ceria 계열의 반응방지층을 필요로 한다. 이러한 반응방지층이 셀의 성능 및 안정성에 매우 중요한 역할을 하기 때문에 얇고 치밀한 막을 형성하여 내부 전기저항과 화학적 반응성을 최소화하기 위한 소재 및 공정기술에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 또한 전극 성능을 더욱 향상시키기 위해서 다공성 전극 표면에 나노스케일의 촉매 분말을 형성하는 기술이 최근 발표되고 있다. SSC ($\text{Sm}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$)는 매우 좋은 전기 전도도와 촉매 특성을 갖지만 열팽창계수가 $20 \times 10^{-6} \text{K}^{-1}$ 이상으로 다른 부품에 비하여 월등히 크기 때문에 다공성 전극으로 활용하는 것이 어렵다. Georgia Institute of Technology의 Meilin Liu 교수 연구팀에서는 용액침투법으로 SSC 나노 분말

촉매를 기존의 다공성 LSCF 전극 내에 형성하여 열팽창 계수 차이에 영향을 받지 않으며 안정하고 매우 높은 성능을 얻을 수 있는 기술을 개발하였다⁵⁾. 또한 같은 방법으로 LSM 나노 분말을 LSCF 전극 내에 형성하게 되면 산소 흡착 및 분해 반응속도를 향상시켜 산소 환원 반응의 과전압을 낮출 수 있다고 보고하였다⁶⁾.

4.2. 음극

SOFC의 음극은 Ni-YSZ cermet이 가장 널리 사용되고 있으며 최근 연구의 방향은 cermet의 조성 및 미세구조 최적화를 통한 성능 향상뿐만 아니라 탄소 증착 및 황을 비롯한 각종 오염물질로 인한 피독에 대한 저항성, 산화-환원 사이클에 대한 안정성 등을 향상시키기 위한 신소재 개발에 초점을 맞추고 있다. Ceria 기반 음극은 환원 분위기에서 혼합 전도도를 가지며 우수한 전극 성능을 나타내고 각종 피독에 대한 저항성이 높기 때문에 주목을 받고 있다. 일반적인 다공성 복합구조 전극은 그 형태와 계면의 성질을 파악하기 어렵기 때문에 전기화학 반응에 대한 체계적인 이해에 한계가 있어 왔는데 최근 California Institute of Technology의 Sossina M. Haile 교수 연구팀은 ceria와 Pt, Ni 등의 다양한 패턴 형성 및 전기화학적 특성 분석을 통해 연료 산화 반응에 대한 ceria-기체 계면의 우수한 촉매 특성을 보고하였다⁷⁾. 또한 University of St. Andrews의 John T.S. Irvine 교수 연구팀이 개발한 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Cr}_{1-y}\text{Mn}_y\text{O}_3$ ⁸⁾, Georgia Institute of Technology의 Meilin Liu 교수 연구팀이 발표한 $\text{BaZr}_{0.1}\text{Ce}_{0.7}\text{Y}_{0.2-x}\text{Yb}_x\text{O}_3$ ⁹⁾, University of Texas at Austin의 John B. Goodenough 교수 연구팀이 개발한 double perovskite $\text{Sr}_2\text{Mg}_{1-x}\text{Mn}_x\text{MoO}_6$ ¹⁰⁾ 등 환원 분위기에서 화학적, 구조적으로 안정하며 전자/이온 전도도를 갖는 세라믹 소재들도 탄소증착과 황에 대한 내구성을 갖는 음극 소재로서 활발히 연구되고 있다.

4.3. 전해질

전해질 물질로서는 이온전도체이며 산화/환원 분위기에서 좋은 안정성을 갖는 YSZ가 가장 널리 사용되어 왔다. 일반적으로 SOFC의 작동 온도는 전해질의 내부저항

을 일정수준 이하로 유지할 수 있는 범위에서 결정되므로 작동온도를 낮추기 위해서는 전해질의 저항을 낮추는 것이 필수적이다. 이를 위한 연구 방향은 크게 두 가지로 나눌 수 있는데 첫번째는 이온 저항이 낮은 신소재를 개발하는 것이고 두번째는 기존 YSZ 전해질의 두께를 낮추는 것이다. 먼저 이온 전도도가 높은 신소재로서는 Ceria 계열, LaGaO_3 계열, Sc-doped zirconia 계열 등이 연구되고 있다. 이들 중 ceria 계열의 전해질은 환원 분위기에서 n-type 전자 전도도가 발생하여 전해질 내부로 전자 흐름이 생기고 효율이 낮아지는 문제가 있다. 앞에서 언급된 다른 전해질 신소재들도 내부저항은 낮출 수 있는 반면 안정성, 다른 부품 소재와의 화학적/열적 정합성 등은 아직 검증이 필요한 단계이다. 최근 University of Maryland의 Eric D. Wachsman 교수 연구팀은 ceria/bismuth-oxide bi-layer 전해질을 사용하여 650°C에서 $\sim 2 \text{ W/cm}^2$ 의 높은 성능을 보고하였다¹¹⁾. 반면 기존의 YSZ 전해질을 박막화하게 되면 신소재 도입에 따른 여러 문제를 피하며 전해질의 내부저항을 낮출 수 있다. 치밀한 YSZ 박막을 형성하기 위해서는 진공증착 장비를 사용하는 기술과 용액 공정에 기반한 기술이 함께 연구되고 있다. PVD, CVD, PLD 등의 진공 증착 방법을 사용하게 되면 양질의 박막을 형성할 수 있지만 초기 설비 비용 및 유지 관리 비용이 높고 대면적화가 어렵다. KIST의 고온 에너지재료 연구센터에서는 치밀한 구조의 박막 전해질을 진공장비를 사용하지 않고 증착할 수 있는 용액공정을 개발하였다. 용액 내에 나노입자를 분산시킴으로써 국부적인 응력장을 형성하여 기존 용액공정의 한계였던 공정결함을 효과적으로 제거하였고 제조공정 및 운전조건에서 $\sim 500\text{nm}$ 두께의 bi-layer 박막 전해질의 안정성을 확보하였다. 셀 평가를 통하여 안정적인 개방회로전압과 중저온에서 높은 전력 밀도를 확인하였으며 이 결과는 Advanced Materials 지에 게재 예정이다¹²⁾.

4.4. 연결재

연결재는 스택에서 셀과 셀을 전기적으로 연결시키고 연료와 공기를 분리시키는 역할을 하며 작동 온도와 스택 디자인에 따라서 세라믹 연결재 또는 금속 분리판이

사용된다. 일반적으로 고온형, 원통형 스택에는 세라믹 연결재가 사용되는데 가장 많이 쓰이는 소재는 perovskite 구조의 LaCrO_3 계열이다. 이 소재는 *p*-type 전자전도체로서 산화/환원 분위기에서 좋은 안정성을 보이고 다른 부품과 열팽창계수가 비교적 잘 맞는다. 하지만 소결이 매우 어렵고 환원 분위기에서는 전자 전도도가 낮아지며 또한 환원에 따른 화학적 팽창이 내부 응력을 유발할 수 있다.

최근 많은 연구자들이 음극지지형 평판형 디자인을 채택하고 작동온도가 800°C 이하로 낮아짐에 따라 Fe-Cr 계열 금속 분리판의 활용도가 높아지고 있다. 금속 분리판은 세라믹 연결재에 비하여 전기/열 전도도가 높고 가격이 낮으며 대면적화가 용이하다는 등 여러 장점을 갖는다. 가장 큰 문제점은 양극 쪽의 산화 분위기에 노출이 된 부분에서 산화막이 성장하며 비저항이 높아지고 또한 기화된 Cr이 양극의 삼상계면을 오염시켜 전극 성능이 열화되는 것이다. 이는 평판형 스택의 성능 열화에 있어서 가장 주요한 원인으로 여겨지고 있으며, 금속 분리판의 장기 안정성을 향상시키기 위해서 양극 쪽을 보호하는 코팅 소재와 공정기술이 폭 넓게 연구되고 있다. 코팅에 사용되는 소재는 전자전도도를 갖는 단일조성 산화물, 각종 spinel과 perovskite 세라믹 등이 있으며 얇고 치밀한 구조를 형성하기 위해서 스크린인쇄법, 스프레이, 도금 등 다양한 기술들이 평가되고 있다.

4.5. 밀봉재

밀봉재는 일반적으로 압축형과 고정형으로 분류된다. 먼저 압축형 밀봉재는 압축 압력을 가하며 변형시켜 밀봉을 이루기 때문에 다른 부품에 붙지 않으며 따라서 열팽창계수를 정확하게 맞추어야 할 필요가 없다. 또한 스택에 이상이 생겼을 경우 수리가 용이하다. 하지만 균일하고 일정한 압력을 지속적으로 가하여야 하기 때문에 스택 및 시스템 디자인이 복잡해지는 경향이 있고 장시간 운전 시 프레임이 creep으로 인하여 변형되는 문제가 발생할 수 있다. 일반적으로 가스 누출율이 높은 편이고 요구되는 누출 조건을 만족시키기 위해서는 매우 높은 압력이 필요하다. 금속 또는 마이카에 기반한 밀봉재가

여기에 속한다. 금속 밀봉재의 경우 일반적으로 부식을 방지하기 위해서 고가의 귀금속이 사용되며 전기적 단락을 막기 위해서 부도체 밀봉재가 함께 사용되어야 한다. 연료 내 수소의 확산으로 금속 밀봉재가 취화되어 기계적 특성이 열화되는 문제가 있다. 마이카의 경우에는 맞닿는 금속 또는 세라믹 부품과의 계면에서 가스 누출이 크기 때문에 금속 또는 글라스와 복합 밀봉을 형성하기도 한다. 고정형 밀봉재는 다른 부품과 화학적 결합을 형성하여 밀봉을 이루는 형태이며 글라스, 또는 글라스-세라믹 복합체가 이에 해당된다. 압축형 밀봉재에 비하여 우수한 밀봉 특성을 나타내고 조성의 최적화를 통해 원하는 성질을 얻기가 용이하며 가격이 저렴하고 제작 공정이 비교적 단순하다. 유리전이온도 이하의 저온에서는 취성이 크고 파괴인성이 낮아서 균열이 생기기 쉬우므로 다른 부품과 열팽창계수를 맞추고 열적, 기계적 응력을 최소화하여야 하며 화학적 안정성도 확보하여야 한다. 글라스나 세라믹의 높은 취성으로 인한 문제를 보완하기 위해서 금속 브레이즈가 고정형 밀봉재의 또 다른 한 형태로 연구되고 있다. KIST의 고온에너지재료 연구센터에서는 글라스 matrix에 두 종류의 세라믹 filler(particulate과 fiber particles)를 사용하여 열사이클에서 탄성복합체 기반 압축형 밀봉재와 유사한 특성을 나타내는 글라스 기반의 복합재료 압축형 밀봉재를 개발하였다. 이는 고정형과 압축형의 장점을 결합한 신개념 밀봉 기술로서 100회 이상의 열사이클에서 탁월한 안정성을 확인하였으며 이 결과는 Advanced Energy Materials에 보고되었다¹³⁾.

5. 해외 기술 현황

5.1. 미국

미국의 SOFC 연구 개발은 1999년 시작된 Solid State Energy Conversion Alliance (SECA) 프로그램에 의해 주도되어 왔으며 궁극적인 목표는 석탄 기반의 발전 플랜트에 결합되어 석탄가스를 연료로 작동하는 대용량 SOFC 개발을 통하여 MW급 고효율 SOFC / 가스터빈 복합발전용 시스템을 구현하는 것이다. 이 프로그램은

Industry Team과 Core Technology로 구성되며 현재 Industry Team으로서는 FuelCell Energy, Versa Power Systems, United Technology Corporation, Delphi, Rolls Royce 등이 참여하고 있다. Core Technology는 여러 대학과 국립연구소 연구팀으로 구성되어 있으며 Industry Team에 의해 제기되는 이슈에 대응하는 원천 기술 개발에 초점을 맞추고 있다. 이 프로그램을 통해 2000년도에 \$1,500/kW 수준이었던 스택 제조 단가를 2010년 대량 생산 기준으로 약 \$175/kW까지 낮추었고 1,000 시간 운전 시 1% 이하의 성능 열화율을 달성하였다. 그러나 최근 평판형에서 가장 앞서 나가던 General Electrics와 원통형 개발을 주도하던 Siemens-Westinghouse가 사업을 중단하였으며 2012년 연료전지 연구개발 예산 삭감에 따라 SECA 프로그램에 대한 U.S. Department of Energy의 지원도 대폭 감소하였다.

SECA 프로그램과는 독립적으로 SOFC를 개발하고 있는 Bloom Energy는 분산 발전용 100kW급 “Bloom Box”의 개발을 최근 언론에 발표하였다. 전해질 지지형 디자인을 사용하기 때문에 900°C 이상의 고온에서 작동을 하며 이로 인하여 Cr 함량이 높은 고가의 합금 분리판을 사용하는 문제점이 있다. 또한 100kW급의 \$700,000에 달하는 비용 중 상당 부분이 캘리포니아 주 정부로부터 지원을 받고 있기 때문에 혁신적인 비용 절감이 이루어지지 않는 한 캘리포니아 외부로의 확장에 어려움이 있을 것으로 보인다.

5.2. 일본

일본의 SOFC 연구는 1974년부터 AIST 및 MITI의 주관하에 주로 국가 프로그램으로 진행되었다. 주요 국가 프로그램인 Sunshine 과제(1974-1993) 및 Moon Light 과제(1979-1993)는 종료되었고 현재는 New Sunshine 과제(1993-)가 국립연구소 및 NEDO에 의해 진행중이며 많은 수의 발전 및 중공업 업체가 참여하고 있다. 국가 프로그램 외에도 기업체 특히 가스업체들에 의한 연구과제 및 대학의 기초연구가 수행되고 있다. Mitsubishi는 원통형 150kW급 SOFC를 개발하며 대형 발전용 연구를 이끌어가고 있고, Kyocera와 Toto는 2007년 1kW급 가정

용 모델을 개발하여 실증사업을 하고 있다. 최근 Osaka Gas, Aisin Seiki Company, Kyocera, Chofu Seisakusho, Toyota는 가정용 SOFC 열병합 발전 시스템 “ENE-FARM Type S”의 공동개발을 발표하였다. 이 복합시스템을 통하여 46.5%(LHV)의 발전 효율을 달성하였으며 2012년 4월부터 Osaka Gas에서 일본 내 판매를 시작할 예정이다.

5.3. 유럽

유럽의 SOFC 연구는 1985년 유럽연합의 JOULE 프로그램을 시작으로 1986년에는 국가 프로그램, 1988년에는 산업체 프로그램이 시작되었다. 유럽에서 진행되는 SOFC 연구의 특징은 여러 국가의 기관들이 유럽연합, 국가 및 산업체 프로그램을 통하여 통합된 주제로 상호 협력하여 연구를 진행하기 때문에 기술 및 정보교환이 매우 효율적으로 이루어지고 있다는 점이다. 미국의 SECA 프로그램에 상응하는 Cathode Subsystem Development and Optimization for SOFC Systems(CATION) 프로그램이 Fuel Cells and Hydrogen Joint Undertaking(FCH-JU)의 재정 지원으로 2011년에 시작었으며 VTT Technical Research Centre of Finland의 운영 하에 Wärtsilä (핀란드), AVL (오스트리아), Topsoe Fuel Cell (덴마크), Bosal Emission Control Systems (네델란드), CE.Si.S.P. (이태리) 등이 250kW급 SOFC의 시장 진입을 목표로 협력 연구를 진행하고 있다. 다른 협력 프로그램인 SOFC600은 열병합 SOFC 시스템과 운송용 보조전원의 상용화를 목표로 작동 온도를 600°C까지 낮추는 연구를 진행하고 있다. SOFC600에 참여하고 있는 Imperial College의 스피노프인 Ceres Power는 세리아 계열 전해질에 기반하여 600°C에서 작동하는 가정용 벽걸이형 SOFC 열병합 발전 시스템을 개발하였으며 실증사업이 진행 중에 있다. 또한 Hexis (스위스), Staxera (독일) 등도 1kW급 평판형 가정용 SOFC의 실증 사업을 통해 상업화를 진행하고 있다.

6. 요약 및 전망

앞서 살펴 본 해외 기술 동향에 의하면 선진국에서의 SOFC 연구는 이미 상용화를 위한 검토가 이루어 지는 단계에 이르렀음을 알 수 있다. 우리 나라의 경우 높은 인구 밀도로 인한 화력, 수력, 원자력 발전의 입지 선정의 어려움과 환경 오염 문제를 고려할 때 미래 에너지원으로서 SOFC 개발은 필수적이라고 사료된다. 선진국들의 연구 동향에 비추어 보면 SOFC에 대한 연구는 그 성격상 소규모로 동시 다발적으로 이루어져서는 실효성을 얻기가 어려움을 알 수 있다. 따라서 우리 나라에서도 정부 출연 연구기관과 학교, 가스회사, 전력회사 등이 참여하는 범국가적인 대규모 프로그램이 성립되어 효율적이고 체계적인 요소 기술 개발과 스택 제조 기술의 개발이 이루어질 때 국제 경쟁력을 갖출 수 있을 것으로 보인다.

참고문헌

1. S. Primdahl, P.V. Hendriksen, P.H. Larsen, B. Kindl, and M. Mogensen, Evaluation of SOFC test data, Electrochemical Society Inc, Pennington (2001).
2. J.R. Wilson, W. Kobsiriphat, R. Mendoza, H.-Y. Chen, J.M. Hiller, D.J. Miller, K. Thornton, P.W. Voorhees, S.B. Adler, and S.A. Barnett, "Three-Dimensional Reconstruction of a Solid-Oxide Fuel-Cell anode", *Nature Materials*, **5** [7] 541 (2006).
3. J.R. Smith, A. Chen, D. Gostovic, D. Hickey, D. and Kunderinger, K.L. Duncan, R.T. DeHoff, K.S. Jones, and E.D. Wachsman, "Evaluation of the Relationship Between cathode Microstructure and Electrochemical Behavior for SOFCs", *Solid State Ionics*, **180** [1] 90 (2009).
4. A.T. Duong and D.R. Mumm, "Microstructural Optimization by Tailoring Particle Sizes for LSM-YSZ Solid Oxide Fuel Cell Composite Cathodes", *J. Electrochem. Soc.*, **159** [1] B40 (2012).
5. X.Y. Lou, S.Z. Wang, Z. Liu, L. Yang, and M.L. Liu, "Improving $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ Cathode Performance by Infiltration of a $\text{Sm}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$ Coating", *Solid State Ionics*, **180** [23-25] 1285 (2009).
6. M.E. Lynch, L. Yang, W.T. Qin, J.J. Choi, M.F. Liu, K. Blinn, and M.L. Liu, "Enhancement of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ Durability and Surface Electro-Catalytic activity by $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$ Investigated Using a New Test Electrode Platform", *Energy and Environmental Science*, **4** [6] 2249 (2011).
7. W.C. Chueh, Y. Hao, W. Jung, and S.M. Haile, "High Electrochemical Activity of the Oxide Phase in Model Ceria-Pt and Ceria-Ni Composite Anodes", *Nature Materials*, **11** [2] 155 (2012).
8. S. Tao and J.T.S. Irvine, "A Redox-Stable Efficient anode for Solid-Oxide Fuel Cells", *Nature Materials*, **2** [5] 320 (2003).
9. L. Yang, S. Wang, K. Blinn, M. Liu, Z. Liu, Z. Cheng, and M. Liu, "Enhanced Sulfur and Coking Tolerance of a Mixed ion Conductor for SOFCs: $\text{BaZr}_{0.1}\text{Ce}_{0.7}\text{Y}_{0.2-x}\text{Yb}_x\text{O}_{3-\delta}$ ", *Science*, [326] 126 (2009).
10. Y.-H. Huang, R.I. Dass, Z.-L. Xing, and J.B. Goodenough, "Double Perovskites as anode Materials for Solid-Oxide Fuel Cells", *Science*, [312] 254 (2006).
11. E.D. Wachsman and K.T. Lee, "Lowering the Temperature of Solid Oxide Fuel Cells", *Science*, [334] 935 (2011).
12. E.-O. Oh, C.-M. Whang, Y.-R. Lee, S.-Y. Park, D.H. Prasad, K.J. Yoon, J.-W. Son, J.-H. Lee, and H.-W. Lee, "Extremely Thin Bi-Layer Electrolyte for Solid Oxide Fuel Cells (SOFCs) Fabricated by Chemical Solution Deposition (CSD)", *Advanced Materials*, Accepted, DOI: 10.1002/adma.201200505 (2012).
13. J.-H. Lee, H. Kim, S.M. Kim, T.-W. Noh, H.-Y. Jung, H.-Y. Lim, H.-G. Jung, J.-W. Son, H.-R. Kim, B.-K. Kim, H.-J. Je, J.-C. Lee, H. Song, H.-W. Lee, "Effect of Elastic Network of Ceramic Fillers on Thermal Cycle Stability of a Solid Oxide Fuel cell Stack", *Advanced Energy Materials*, Accepted, DOI: 10.1002/aenm.201100355 (2012).

●● 윤경중



- 서울대학교 재료공학과 학사
- University of Florida, Materials Science and Engineering 석사
- Boston University, Manufacturing Engineering 박사
- 한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터 선임연구원

●● 이종호



- 서울대학교 무기재료공학과 (학사)
- 서울대학교 무기재료공학과 (석사)
- 서울대학교 무기재료공학과 (박사)
- 한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터 책임연구원

●● 손지원



- 서울대학교 무기재료공학과 학사
- 서울대학교 무기재료공학과 석사
- Stanford University, Materials Science and Engineering 박사
- 한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터 책임연구원

●● 김병국



- 서울대학교 무기재료공학과 학사
- 서울대학교 무기재료공학과 석사
- 서울대학교 무기재료공학과 박사
- 한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터 센터장

●● 제해준



- 서울대학교 무기재료공학과 학사
- 한국과학기술원 재료공학과 석사
- 한국과학기술원 재료공학과 박사
- 한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터 책임연구원

●● 이해원



- 서울대학교 무기재료공학과 학사
- 서울대학교 무기재료공학과 석사
- University of Florida, Materials Science and Engineering 박사
- 한국과학기술연구원 고온에너지재료연구센터 책임연구원