

## 고체산화물 연료전지 제조를 위한 플라즈마 용사법의 최적화 Optimization of plasma spray technique for solid oxide fuel cell

주원태\*, 홍상희 (서울대학교)

### 1. 서론

고체산화물 연료전지<sup>[1]</sup>는 저온 연소반응을 통해 화학적 에너지를 직접 전기에너지로 변화시키는 고효율의 청정에너지원으로 주목받고 있다. 현재 이를 구현하기 위해서 소결법, EVD(electrochemical vapor deposition) 등이 주로 이용되고 있다. 그러나 고체전해질 연료전지를 구성하는 공기극, 고체전해질, 연료극이 세라믹 혹은 세라믹-금속 복합체의 피막으로 이루어져 있고, 각각의 기능에 따라 서로 다른 물리적, 화학적 특성을 가지고 있어 다양한 제조기법의 복합적인 조합으로 제조되고 있다. 따라서 고체전해질 연료전지의 상용화를 위해선 보다 경제성, 단순성, 신뢰성이 높은 제조공정의 개발이 요구되고 있다. 이중 플라즈마 용사법<sup>[2]</sup>은 특히 고용점의 세라믹 및 금속 피막의 제조에 있어 우수한 기법으로 인정받고 있으나, 고체산화물 연료전지의 구성소재에 대한 용사공정자료 체계화가 미흡한 실정이다. 이 연구에서는 연료전지를 구성하는 공기극, 고체전해질, 연료극 피막을 제조하기 위한 플라즈마 용사공정 변수를 최적화하고, 높은 기공율을 갖는 연료전지 지지체의 용사성형기법을 개발함으로써 플라즈마 용사의 단일기법에 의한 고체산화물 연료전지의 제조기법을 확립하고자 한다. 또한 기존의 용사기 전극 구조를 개선하여 플라즈마 제트 불꽃을 안정화시켜 고체전해질 피막의 치밀화 가능성을 살펴보고자 한다.

### 2. 실험방법

연료전지를 구성하는 공기극, 고체전해질, 연료극 피막의 제조를 위해 각기 LSM( $\text{La}_{0.65}\text{Sr}_{0.35}\text{MnO}_3$ ), 8YSZ( $\text{ZrO}_2-8\text{mol}\%\text{Y}_2\text{O}_3$ ), Ni-8YSZ 피막재 분말의 용사공정조건을 통계적 공정분석법과 제조된 피막의 기공도 분석을 통해 최적화하고 각 요소피막의 전기적 특성 및 피막재 분말과 용사피막간의 조성변화를 살펴 보았다.

연료전지의 지지체로 사용하기 위한 기공율 40 %이상을 가지는 다공성 NiCrAlY 지지판의 제조하기 위해 기공형성자 및 이형층의 개념으로 NaCl을 사용하였으며, NaCl과 NiCrAlY의 공급비 변화에 따른 기공율의 증가경향을 조사하였다.

기존의 용사기의 운전에서 관찰되는 아크 전압의 진동폭 및 주기를 제어하여 피막재 분말과 플라즈마 제트 불꽃의 상호작용을 향상시키기 위해 계단형 노즐 전극을 도입하였다. 계단형 노즐 전극의 구조에 따른 아크 전압의 변동 억제효과와 이에 따른 고체전해질 피막의 치밀화 가능성을 살펴 보았다.

이상의 연구결과를 조합하여 고체산화물 연료전지를 제조하고, 분위기 기체 빛 온도제어가 가능한 단위전지 시험 평가로를 제작하였다. 연료 및 산화제 기체의 유량 그리고 동작온도에 따른 단위전지의 발전성능을 평가하였다.

### 3. 결과 요약

고체전해질(8YSZ) 피막은 XRD 분석결과 원료분말과 동일한 입방정 이었으며, 1000°C의 공기분위기에서 측정된 전기전도도는 0.062~0.079 S/cm로 비교적 높은 값을 보였으나, 기공율은 13 %로 요구되는 값보다 다소 높게 나타났다.

LSM 공기극 피막은 LSM의 성분변화를 배제하기 위해 용사기 출력 20 kW에서 제조하였으며 ~ 90 S/cm정도의 전기전도도와 ~ 28 %의 기공율을 보유하고 있었다. 용사기 출력 33 kW 이상에서는 피막재 분말의 과열 및 열분해에 의한 성분변화로 불균일한 전기전도도 값을 갖는 것으로 나타났다.

Ni과 8YSZ 분말의 분사혼합방식으로 혼합비를 변화시켜가며 제조한 연료극 피막은 분말 공급비(Ni/8YSZ)가 1:2 정도로 용점이 높은 8YSZ의 공급량을 늘려 제조한 경우 30 %정도의 높은 기공율과 Ni의 균일한 분포를 얻을 수 있었다. 상온에서 측정된 전기전도도는 ~ 600 S/cm로 나타났으나 XRD 분석결과 용사피막내에 상당량의 NiO이 존재하고 있어, 연료전지 동작시 환원과정을 거치면 연료극으로서 적합한 전기전도도를 가질 것으로 판단되었다.

NaCl과 NiCrAlY의 공급 부피비 30/20에서 얻은 성형체는 40~50 %의 높은 기공율을 가지면서도 연속되는 연료극, 고체전해질, 공기극 제조시 용사공정에 있어 반복되는 열충격과 연료전지 성능시험을 통한 고온 산화환원 분위기 노출에 안정적인 결과를 보였다.

아크 전압 변동율을 제어하기 위해 도입한 계단형 노즐을 사용하여 아크의 길이를 제어한 결과 10 kHz의 높은 특성 주파수와  $\pm 5 \sim 10$  V 미만의 낮은 아크 전압 변동폭을 갖는 상대적으로 안정된 플라즈마 제트의 형성이 가능하였다.

이상의 결과를 조합하여 원통형 단위전지를 제작함으로써 플라즈마 용사법의 단일기법에 의한 고체산화물 연료전지의 제조공정을 확립할 수 있었으며, 단위전지의 성능평가 결과 계단형 노즐을 도입하여 플라즈마 제트 불꽃을 안정화시켜 기존의 상압 플라즈마 용사공정을 개선함으로써 용사기의 출력이득을 취할 수 있음은 확인할 수 있었으나, 보다 치밀한 고체전해질 피막을 얻기 위해선 엄밀한 공정분석 연구가 필요할 것으로 판단되었다.

### 참고문헌

- [1] K. Kordesch and G. Simader, *Fuel Cells and Their Application*, VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim, Germany, pp 133-151 (1996).
- [2] L. Pawlowski, *The Science and Engineering of Thermal Spray Coatings*, John Wiley & Sons Ltd., Chichester, England, pp 28-52 (1995).