

습식법에 의한 고체산화물 연료전지용 연료극 지지체관의 제조 및 특성 연구

김응용 · 송락현* · 임영언

충남대학교 재료공학과
*한국에너지기술연구소

Fabrication and Characteristics of Anode-Supported Tube for Solid Oxide Fuel Cell

Eung Yong Kim, Rak-Hyun Song*, and Yeung-Eon Lim

Department of Materials Engineering, Chungnam National University, Taejeon, Korea

*Korea Institute of Energy Research, Taejeon, Korea

(2000년 2월 3일 받음, 2000년 8월 14일 최종수정본 받음)

초 록 연료극 지지체식 원통형 고체산화물 연료전지를 개발하기 위해 연료극 지지체와 전해질이 코팅된 연료극 원통관의 제조 및 그것의 특성에 대해 연구하였다. 연료극 지지체는 20-50vol.%의 탄소함량에 따라 만들어졌으며, 탄소량이 증가함에 따라 연료극 지지체의 기공율도 점차 증가하였으며, 적절한 기공율을 가지기 위한 최적 탄소량은 30vol.%임을 확인하였다. 연료극 지지체관은 압출법으로 제작하였으며, 전해질은 슬러리 코팅법으로 원통관의 바깥쪽에 코팅하였고, 1400℃에서 공소결을 성공적으로 실시하였다. 소결후 물리적특성과 미세구조를 조사하였으며, 연료극 지지체관의 기공율은 35%이었고 연료전지의 요구조건을 만족하였다. 기체투과율 시험을 통하여, 연료극 지지체관 자체는 충분히 다공성을 나타내었으나, 전해질층을 코팅한 경우에는 매우 낮은 기체투과율을 나타냄을 확인하였다. 이것은 코팅된 전해질층이 매우 치밀하다는 것을 의미하며, 본 연구를 통해서 연료극 지지체식 원통형 고체산화물 연료전지가 제조될 수 있음을 확인하였다.

Abstract To develop anode-supported tubular cell with proper porosity, we have investigated the anode substrate and the electrolyte-coated anode tube. The anode substrate was manufactured as a function of carbon content in the range of 20 to 50 vol.%. As the carbon content increased, the porosity of the anode substrate increased slightly and the carbon content with proper porosity is found to be 30 vol.%. The anode-supported tube was fabricated by extrusion process and the electrolyte layer was coated on the anode tube by slurry coating process. The anode-supported tube was co-fired successfully at 1400 °C in air. The porosity of the anode tube was 35%. From the gas permeation test, the anode tube was found to be porous enough for gas supply. On the other hand, the anode-supported tube with electrolyte layer indicated a very low gas permeation rate. This means that the coated electrolyte was dense.

Key words : solid oxide fuel cell, anode-supported tube, electrolyte coating, extrusion, slurry coating

1. 서 론

고체산화물 연료전지(Solid Oxide Fuel Cell; SOFC)는 1000℃의 고온에서 연료기체가 소유하고 있는 화학에너지를 전기화학반응에 의해 직접 전기에너지로 변환시키는 에너지 변환 장치이다. 고체산화물 연료전지의 특징은 다른 연료전지에 비해 효율이 높고 공해가 적으며, 연료개질기(fuel cell reformer)가 필요없고 복합발전이 가능하다는 것이다. 현재 고체산화물 연료전지는 원통형 및 평판형 구조가 주로 개발되어지고 있다.^{1,2)} 평판형 구조의 잇점은 원통형 구조에 비해 높은 성능과 전력밀도를 소유한다는 것이다. 전류의 흐름이 구성요소의 면에 수직 방향으로 흐르기 때문에 전지의 내부저항은 전지 면적에 의존하지 않고, 구성요소의 두께에만 의존하게 된다.

평판형 구조의 문제점으로는 대면적 전해질제조가 쉽지

않고 기체 밀봉제가 반드시 필요하다는 점이다. 또한 평판형의 경우 금속 연결재의 사용과 구성요소간의 열팽창계수의 차이로 인한 열응력 저항성의 약화가 큰 문제점으로 대두되고 있다. 최근 평판형 구조에서 발생된 이러한 문제점을 해결하기 위해서 많은 연구자들이 연료극 지지체형 평판형 구조를 연구하고 있으며, 연료전지의 정상 운전온도보다 낮은 700-800℃에서 시험운전을 실시하고 있다.^{3,4)} 그러나 여전히 대면적 전지 제조공정 개발 및 대형 스택제조, 금속 연결재의 적용 문제 등 평판형 구조의 문제점은 해결되지 않은 상태이다.

이에 반해 원통형 연료전지는 전력밀도가 평판형 구조에 비해 다소 떨어지나, 구조적으로 반응기체 밀봉제가 필요하지 않아 셀 간의 밀봉이 쉽고, 기계적 강도가 높으며, 열응력에 대한 저항성이 높다는 장점 때문에 원통형구조에 대한 연구 및 기술이 크게 앞서 있으며, 수년내 MW급 원통형

고체산화물 연료전지 발전소가 건설될 예정이다.⁵⁾ 고체산화물 연료전지의 실제적인 응용에 있어서 저가 제조공정으로 신뢰할 수 있는 셀의 제조는 대단히 중요하다. 원통형 고체산화물 연료전지는 일반적으로 CVD (chemical vapor deposition), EVD (electrochemical vapor deposition), 또는 Plasma spray 법 등으로 만들어진다. 그러나 이러한 제조공정들은 전해질, 전극과 연결재층을 증착하는 동안에 상대적으로 비싼 제조설비와 복잡한 마스크링 과정들이 필요하게 된다.

현재 원통형 고체산화물 연료전지에 있어서는 주로 공기극 지지체식 구조가 개발되어지고 있으며, 이 구조는 공기극 재료인 LaSrMnO_3 의 제조가 복잡하고 고가의 La를 사용하며, 전해질 및 전극 코팅에 사용되는 고가의 전식 제조공정으로 인해 경제성이 떨어진다는 단점이 있다. 또한 소성온도가 낮은 공기극 지지체관에 전해질 및 연료극을 코팅하여 높은 온도에서 공소결함으로써 공기극의 활성 감소 등이 문제점으로 제기되고 있다.⁶⁾ 이러한 문제점을 해결하기 위해 본 연구자들은 연료극 지지체식 원통형 연료전지 구조를 제안하였으며⁷⁾, 연료극 지지체식의 경우 고강도의 원통관 제조가 가능하고 연료극 지지체식 원통관과 전해질을 먼저 소결한 후 공기극을 코팅하기 때문에 공기극 활성감소 등의 문제가 발생하지 않을 뿐만 아니라 지지체로 공기극을 사용하지 않기 때문에 사용되는 La양을 감소시킬 수 있다는 장점을 갖는다. 특히 최근에 앞서 언급한 평판형 구조에 있어서 저가 제조공정과 기계적 강도가 높은 특징을 가지고 있는 연료극 지지체식 구조에 대한 연구가 활발하게 진행되고 있으며, 연료극 지지체식 평판형 연료전지로부터 높은 성능이 얻어졌으며^{3,4)}, 이런 연료극 지지체식 평판형 구조의 개념은 원통형 구조로 확장될 수 있을 것으로 생각된다.

그래서 본 저자들은 고체산화물 연료전지에서 나타난 문제점을 개선하기 위해 처음으로 연료극 지지체식 원통형 구조를 제안하였으며⁷⁾, 본 연구에서는 이러한 구조의 실제 제조 가능성을 조사하기 위해 원통형 구조의 핵심 기술인 연료극 지지체식 원통관과 전해질 코팅에 관한 연구를 수행하였다. 지지체식 원통관에 다공성을 주기 위해 기공 형성제로 탄소분말을 사용하였으며, 탄소함량에 따른 연료극 지지체의 소결 특성을 조사하였다. 원통관은 압출법을 이용하여 제조하였고, 제조된 원통관을 가스결한 후 슬러리코팅법을 이용하여 전해질을 코팅한 후 소결하였으며, 제조된 원통관의 미세구조 및 가스투과율을 조사하고 토의하여 고체산화물 연료전지 요구조건에 대한 적합성을 검토하였다.

2. 실험 방법

연료극은 연료의 전기 화학적 반응위치를 제공하는 역할을 한다. 그래서 연료극은 환원성 분위기에서 안정하고, 연료가스에 대한 충분한 촉매성 및 전자 전도도를 갖고 있어야 한다. 고체산화물 연료전지는 600°C-1000°C의 고온에서 작동되므로, 이러한 온도범위에서 다른 구성재료와 열화학적으로 안정해야 한다. 이러한 요구조건을 만족하는 연료극 재료가 Ni-Y₂O₃ stabilized ZrO₂ (YSZ) 의 서멧 (cer-

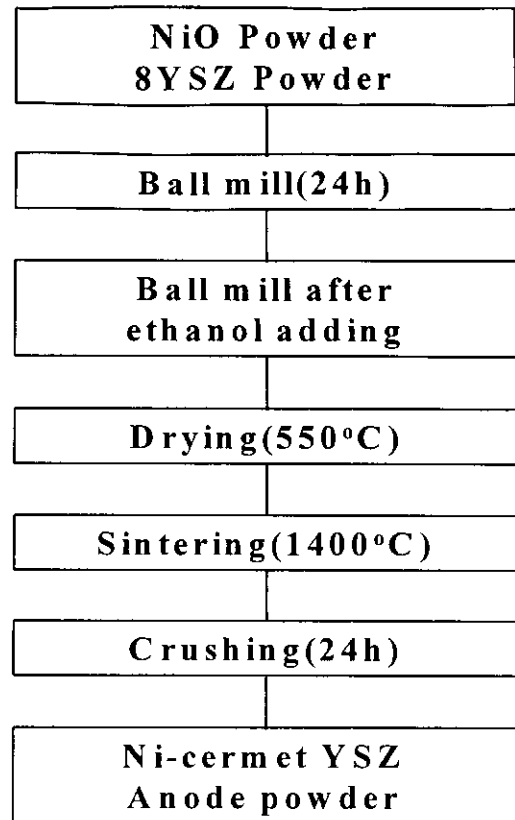


Fig. 1. Anode powder manufacturing process for SOFC

met) 이다. 따라서 본 연구에서는 NiO 분말과 8mol%YSZ (Tosoh Co.)의 혼합물로부터 연료극을 제조하였으며, 그림 1에 그 제조방법을 나타내었다. 먼저 40vol.% Ni이 첨가된 Ni-YSZ 서멧을 제조하기 위해서 NiO 분말과 YSZ 분말을 각각 정량하여 혼합하였다. 혼합된 분말은 지르코니아 불 및 용기를 이용하여 24시간동안 불 밀링 (ball milling) 을 하여 YSZ와 NiO가 균일하게 혼합된 것을 확인한 후에 에탄올을 첨가하고 다시 24시간동안 불 밀링을 하여 슬러리로 제조하였다. 이렇게 제조된 슬러리를 건조시킨 후 분쇄하고 다시 550°C에서 3시간 건조시켜 1차 분말을 제조하였다. 1차로 제조된 분말을 1400°C에서 5시간동안 열처리 후 지르코니아 불을 이용하여 가속 불 밀에서 분쇄하여 연료극 분말의 제조를 완성하였다.

기공형성제로 쓰이는 탄소의 최적함량을 조사하기 위해서 20-50vol.%의 탄소함량을 갖는 NiO-8mol%YSZ 펠렛 (pellet) 모양의 시편들을 일축 가압성형법으로 제조하였다. 연료극 분말에 각각 정량된 탄소분말과 바인더 (binder) 로써 2wt.%의 polyvinylalcohol 수용액을 5wt.% 첨가한 후 가속불밀에서 12시간동안 밀링하여 혼합체를 제조하고 건조하여 가압성형용 혼합분말을 완성하였다. 이 혼합분말들을 사각몰드에 넣고, 6000psi로 가압 성형하여 10×20×10mm 크기의 펠렛들을 제조하였다. 펠렛들은 바인더 및 탄소분말을 제거하기 위해서, KS 규격⁸⁾에 따라 먼저 500°C에서 3시간, 750°C에서 2시간, 950°C에서 2시간동안 열처리한 후, 최종적으로 1400°C에서 3시간동안 소결

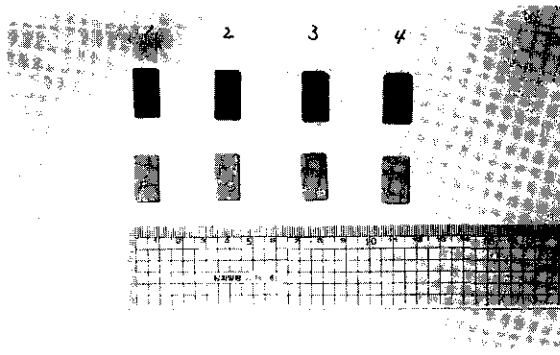


Fig. 2. Anode pellets manufactured as a function of carbon content using die pressing process(1=20, 2=30, 3=40, 4=50vol.% carbon)

하였다. 그림 2에 탄소함량에 따라 제조된 펠렛과 소결을 마친 펠렛들을 나타내었다. 소결된 시료의 밀도는 소결체의 무게와 부피를 측정함으로써 조사하였으며, 그들의 상대밀도와 기공크기, 기공율 등 소결특성 및 미세구조를 분석하여, 적절한 기공율을 지니기 위한 최적의 탄소함량을 결정하였다.

다공성 전극 지지체관은 압출법을 이용하여 제조하였으며, 압출용 연료극 페이스트(paste)는 연료극 분말, 탄소분말, 바인더, 증류수를 혼합하여 제조하였다. 연료극과 탄소분말의 균일한 혼합을 위해, 에탄올을 첨가해서 14일 동안 불 밀링을 실시한 후 건조하였다. 압출된 원통관이 충분한 강도를 가지기 위해서는 첨가되는 바인더의 종류와 양의 조절이 중요하며, 이러한 목적으로 본 연구에서는 여러 가지 유기물질들을 함유한 혼합바인더를 사용하였다. 미리 제조한 연료극/탄소 분말에 혼합바인더를 50vol.% 첨가하고, 증류수를 30wt.% 첨가하여 혼합하였다. 혼합을 마친 연료극 페이스트는 수분의 분포를 균일하게 하기 위해서 상온에서 24시간동안 시효처리를 실시하여 연료극 페이스트 제조를 끝마쳤다. 완성된 연료극 페이스트는 압출법을 이용하여 지름 25mm, 두께 2mm의 원통관을 제작하였으며, 압출된 관은 첨가한 수분, 바인더 및 탄소분말을 제거하기 위해 100℃ 및 200℃에서 24시간 동안 건조한 후, 500℃에서 3시간, 750℃에서 2시간, 950℃에서 2시간동안 열처리하였으며, 1300℃에서 가소결 과정을, 1400℃에서 최종 소결하였다. 가소결된 원통관과 최종소결된 원통관의 미세구조를 분석하고 기공율을 조사하였다.

전해질층은 연료극 지지체 원통관의 바깥 부분에 코팅하였으며, 슬러리 코팅법(slurry coating process)을 이용하여 제조하였다. 전해질 슬러리는 8 mol%YSZ 분말에 polyvinylbutyral, Di-n-buthalate, Triton-X (polyethylen glycol mono-p-isotyphenyl ethan), Fish oil 등의 유기물 첨가제와 용매로서 Toluene, 2-propanol을 각각 정량하여 지르코니아 용기에 넣고 지르코니아 볼을 이용하여 24시간 동안 불 밀링을 하여 슬러리를 제조하였다. 1300℃로 가소결된 다공성의 연료극 지지체관을 미리 제조해 놓은 지르코니아 슬러리에 담가서 적당한 코팅두께가 형성될 때까지 슬러리 코팅을 실시하였다. 전해질층이 코팅된

원통관은 350℃에서 탈지처리를, 1400℃에서 공소결을 실시하여 연료극/전해질 원통관을 제조하였다. 공소결을 마친 연료극 지지체관의 지름과 두께는 각각 16mm, 1.5mm이었으며, 코팅된 지르코니아막이 가스를 통과하지 않을 정도로 치밀하게 코팅되었는지 여부를 조사하기 위해 가스부과율 및 미세구조를 조사하였다.

3. 결과 및 고찰

적절한 기공율을 가진 연료극 지지체관을 제작하기 위해서는 기공형성제와 그 첨가량이 결정되어야 한다. 본 연구에서는 소결된 세라믹 성형체에 기공을 주기 위해서 탄소분말을 기공형성제로 선택하였으며, 그 탄소 첨가량을 결정하기 위해 가압 성형법으로 펠렛들을 제조하여 상대밀도를 조사하였다. 그림 3에 소결된 연료극 지지체의 상대밀도에 미치는 탄소함량의 효과를 나타내었다. 상대밀도는 소결밀도와 이론적인 밀도로부터 계산하였으며, 제조된 연료극 지지체의 상대밀도는 탄소함량의 증가와 더불어 60~40%까지 선형적으로 감소하였다. 비록 낮은 상대밀도가 개기공(open pore)으로부터인지 폐기공(closed pore)으로부터 발생했는지는 정확히 알 수 없으나, 소결된 연료극 지지체는 상당히 다공질임을 알 수 있다.

그림 4에 20 및 50vol.%의 탄소함량을 가진 연료극 지지체의 미세구조를 나타내었으며, 연료극 지지체는 다공질로 구성되어 있음을 명확히 알 수 있고, 탄소함량이 많을수록 연료극 지지체관의 미세조직이 더욱 다공성이 되며, 이 결과는 그림 3의 상대밀도의 것과 일치함을 알 수 있다. 그러나 연료극 지지체의 입자 크기는 탄소함량에 거의 의존하지 않았으며, 이것은 사용된 탄소입자가 고순도이고 약 1000℃ 부근에서 탄소입자들은 완전히 연소되기 때문에 연료극 지지체의 소결 거동은 단지 연료극내 NiO와 YSZ입자의 소결 특성에 의존하기 때문인 것으로 판단되며, 이러한 거동은 다른 연구자들의 결과⁹⁾와 일치하고 있다.

연료극 지지체의 기공 특성을 좀더 명확히 하기 위해 탄소함량에 따른 그들의 기공율을 mercury porosimeter로 측정하여, 그 결과를 표 1에 나타내었다. 가압 성형법으로 만들어진 연료극 지지체의 기공율은 탄소함량이 증가함에

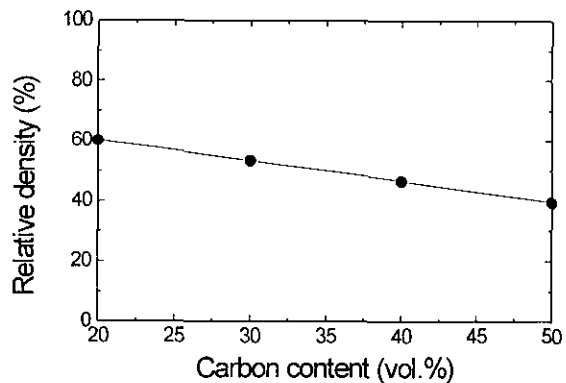


Fig. 3. The effect of carbon content in the sintered anode substrates on the relative density

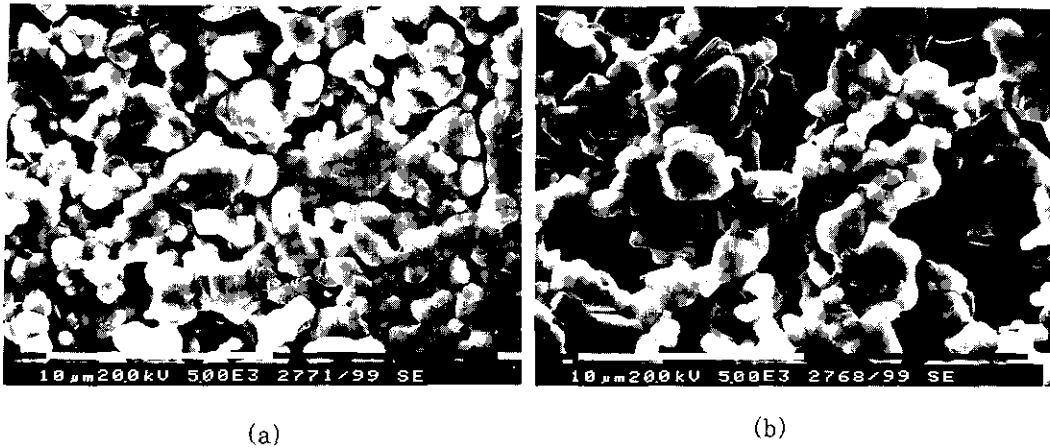


Fig. 4. The SEM photos of anode substrates with 20vol.% carbon(a) and 50vol.% carbon(b)

Table 1. The porosity of anode supporter with various carbon contents manufactured by the die pressing and extrusion process*

Process	Carbon Content	Porosity
Die Pressing	20 vol.%	25 %
	30 vol.%	29%
	40 vol.%	31%
Extrusion	30 vol.%	35(43*)%

*Presintered tube

따라 증가하지만, 30vol.%와 40vol.% 탄소함량에서의 기공률 차이는 그다지 크지 않았다. 과잉의 탄소가 첨가될 경우 소결된 연료극 지지체를 열처리하는 동안 탄소의 불완전 연소에 의해 잔류 탄소함량을 증가시킬 가능성이 크고 NiO와 8YSZ 혼합 분말과 탄소분말이 균일한 혼합을 이루지 못하여 국부적인 조성불균일을 유발하며, 때로는 이들 과량의 탄소분체들이 큰 크기의 응집체를 형성하여 큰 기공을 유발시키기도 한다. 또한 탄소를 과량 첨가시 탄소에 의한 불균일 분포는 국부적으로 소결밀도의 차이를 나타내어 기체투과율 측면에서도 불리한 것으로 판단된다. 따라서 비슷한 기공률 범위 내에서도 가능한 적은 양의 탄소를 첨가하는 것이 유리하다고 판단되며, 압출법을 사용하여 연료극 지지체관을 제작하기 위한 적정 탄소함량을 연료전지의 기공률 요구조건을 만족하는 30vol.%로 결정하였다.

그림 5는 30vol.%의 탄소를 첨가하여 제조된 연료극 지지체관 및 그것의 미세구조를 나타낸다. 소결된 연료극 지지체관의 수축율은 22.7% 이었으며, 높은 기계적 강도를 지니고 있었다. 압출법으로 제조된 연료극 지지체관에 전해질 슬러리를 이용해 연료극/전해질층을 구성하기 위해서는 가소결 상태의 연료극 지지체관에 전해질층을 코팅한 후 공소결을 실시해야 한다. 왜냐하면 지지체가 완전히 소결된 후 전해질을 코팅하게 되면, 전해질의 소결시 수축율의 차이로 전해질이 박리되거나 깨어지기 때문이다. 그러므로 정상적인 소결 온도보다 낮은 온도에서 가소결을 시킨 후 전

해질을 코팅하게 된다. 그러나 가소결 온도가 지나치게 낮은 경우 전해질과 지지체의 수축율 차이는 감소시킬 수 있으나 가소결된 원통관의 강도가 약해 쉽게 깨지는 현상이 관찰되었다.

실제 1000~1250℃에서 가소결한 원통관의 경우, 손으로 다루기가 어려울 정도로 강도가 약했을 뿐만 아니라 전해질층을 지지체관 표면에 코팅하는 동안 또는 코팅후 공소결을 실시하는 동안에 원통관에 균열이 발생하여 지지체로 사용하기에는 부적합하였다. 슬러리 코팅을 실시하는 과정에서 적절한 강도를 가져서 지지체 표면에 손상이 일어나지 않고 적절한 강도를 가지면서 시편내 균열이 발생하지 않을 정도의 수축율을 유지할 수 있는 온도는 1300℃가 적당하였으며, 이 온도에서 3시간동안 가소결을 실시하였다. 그림 5의 가소결된 지지체관 및 소결된 지지체관의 미세조직을 보면 소결이 진행됨에 따라 입자크기가 증가함을 알 수 있다. 또한 표 1에서 보는 바와 같이 가소결과 소결을 실시한 후 연료극 지지체관의 기공률은 각각 43%, 35%이었으며, 압출법에 의해서 만들어진 연료극 지지체관의 기공률이 가압성형법으로 만든 연료극 지지체의 기공률보다 높았으며, 이는 바인더의 함량과 종류 및 제조 공정의 차이에 기인하는 것으로 생각된다.

1300℃에서 가소결된 연료극 원통관 위에 슬러리 코팅법으로 전해질층을 코팅하였으며, 그림 5에 보여준 바와 같이 코팅된 전해질층의 두께는 약 60μm로 치밀하였으며, 연료극 지지체관에 잘 정착되어 있었다. 연료극 지지체관에 전해질층을 한번 코팅한 경우, 전해질층은 약 20μm의 두께를 나타내었으며, 그림 5의 연료극 지지체관의 전해질층은 3회 코팅을 실시한 후의 결과이다. 전해질층의 두께는 전해질 슬러리의 점도와 코팅횟수에 의해서 결정되며, 슬러리의 점도가 높고, 코팅횟수가 많을수록 코팅층은 더욱 두꺼워지지만, 이로 인해 연료극 지지체관과 전해질간의 수축율의 차에 기인해서 코팅된 전해질층을 가로질러 균열을 유발시킬 수 있다.⁷⁾ 위와 같은 슬러리 코팅 방법의 가장 큰 단점은 건조나 열처리 중에 균열 혹은 박리가 발생하는 것인데, 대개 이러한 균열은 코팅공정 직후의 건조 또는 소결과정

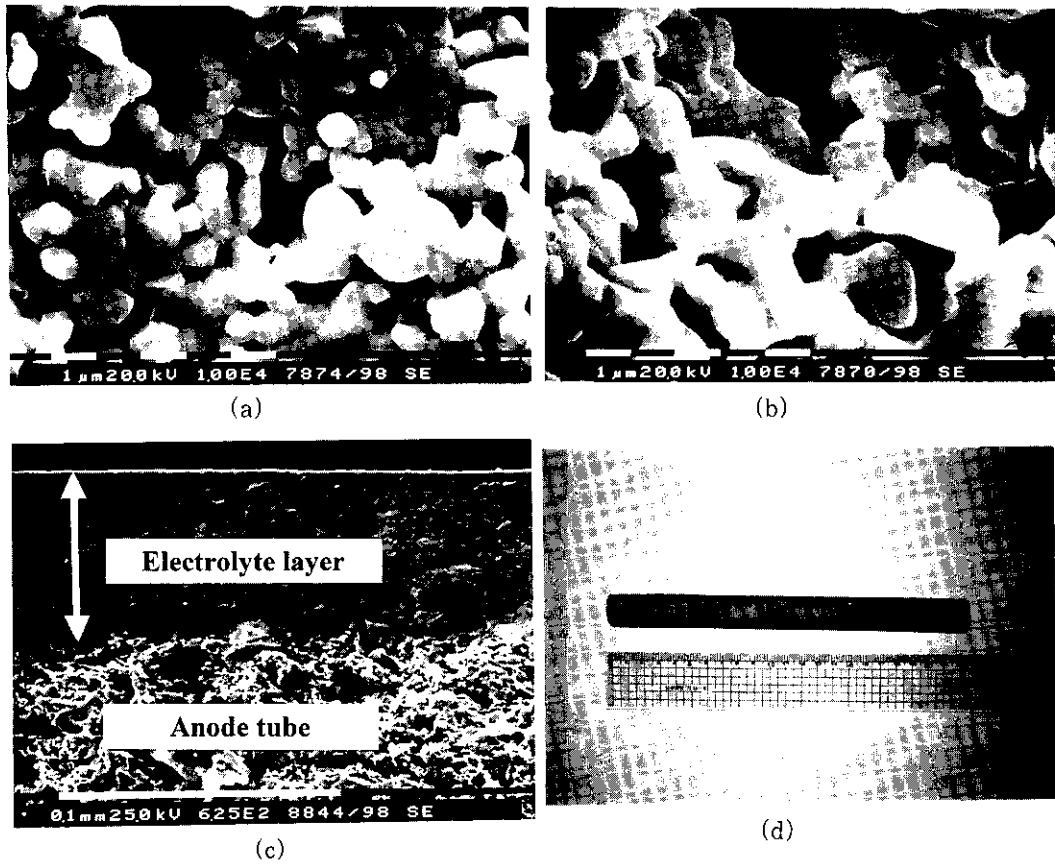


Fig. 5. The SEM photos of presintered tube(a), sintered tube(b), sintered tube with coated electrolyte layer(c) and anode-supported tube manufactured by extrusion process(d)

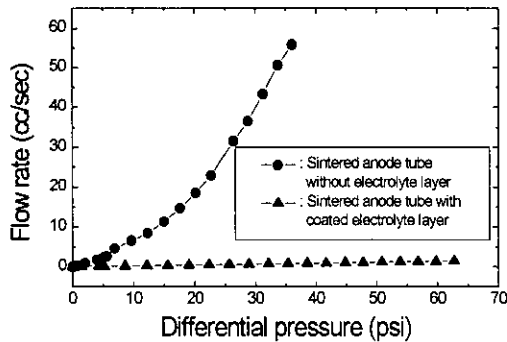


Fig. 6. The gas permeability of sintered tube with and without coated electrolyte layer

중에 발생하였다. 즉 고상 입자들이 분산된 슬러리가 캐스팅 후 코팅층을 형성하고 나서 이에 잔류하는 용매가 표면부에서부터 증발하므로, 표면에 가까운 부분과 먼 부분 사이에 커다란 밀도차이가 발생된다. 이로 인하여 건조 및 소결 과정에서 수축률에 큰 차이를 발생하고, 코팅층 표면쪽으로 휨이 발생하며, 정도에 따라서는 균열 내지는 코팅층과 지지체가 서로 박리되기도 한다. 따라서 통상의 슬러리 코팅시 수축응력을 최소화하기 위해서는 1회에 코팅되는 전해질층의 두께는 작아야 하며, 이러한 목적을 달성하기 위해 적당히 묽은 슬러리를 제조한 후 여러번 코팅을 실시하여 원하는 두께를 얻는 방법으로 코팅된 전해질층의 균열 발생

을 억제하였다.

고체 산화물 연료전지에서 연료극 지지체관을 가로지르는 방향으로의 가스의 투과가 충분히 높아야 되나, 전해질층을 가로질러 가스의 투과가 발생한다면 반응 가스들간의 cross-over로 인해 직접적인 연소반응이 발생하게 되어 전지 성능이 크게 감소하게 된다.¹⁰⁾ 따라서 전해질을 가로지르는 방향으로의 가스투과 여부가 중요하게 고려되어야 한다. 그림 6은 전해질층을 코팅하지 않은 연료극 지지체관의 가스투과율과 60 μ m 두께의 전해질층을 코팅한 후 공소결한 연료극 지지체관의 가스투과율을 측정된 결과이다. 소결된 연료극 지지체관 자체의 가스투과율은 상압에서도 높은 값을 나타내었으나, 가스결된 연료극 지지체관에 60 μ m의 전해질 코팅층을 형성시키고, 1400 $^{\circ}$ C에서 공소결시킨 경우, 상압에서는 전혀 기체 투과가 일어나지 않았으며, 약 4atm에서도 매우 낮은 기체 투과율을 나타내었다. 이는 1400 $^{\circ}$ C의 온도에서 전해질층 및 연료극 지지체 원통관의 공소결이 진행됨에 따라 전해질 코팅층에서 입성장과 치밀화가 일어나면서 개기공을 충분히 채울 수 있을 만큼 치밀한 코팅층이 형성되었음을 의미한다. 결국, 제조된 연료극 지지체관 자체는 다공성인 반면에, 전해질층이 가스투과를 위한 장벽으로서의 역할을 했기 때문이다. 이러한 결과는 코팅된 전해질층이 충분히 치밀함을 나타내며, 세라믹 연료전지의 전해질과 연료극의 조건을 충분히 만족시키는 것으로 판단된다.

4. 결 론

연료극 지지체형 원통형 고체산화물 연료전지의 제조 가능성을 조사하기 위해서 먼저 탄소의 함량에 따른 연료극인 NiO-8YSZ 지지체를 제조하고 특성을 조사하였으며, 압출법에 의해 연료극 지지체관을 제작하고, 지지체관 위에 전해질층의 슬러리 코팅을 실시하여, 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 연료극 지지체의 기공율은 탄소함량에 따라 증가하였으며, 적절한 기공율을 얻기 위해서는 30vol%의 탄소함량이 필요하였다.

2) 연료극 지지체관이 압출법에 의해서 제작되었으며, 연료극 지지체관을 1300℃에서 가소결한 후 슬러리 코팅법으로 지지체관 위에 전해질층을 입힌 후 1400℃에서 연료극/전해질층의 공소결을 실시하여 연료극 지지체구조의 원통형 고체산화물 연료전지를 성공적으로 제작하였다. 이때 연료극 지지체관은 탄소함량 30vol.%에서 35%의 기공율을 나타내었다.

3) 연료극 지지체관 자체의 가스투과율은 매우 높았으나, 전해질층을 코팅한 후 공소결된 원통관은 1atm에서 뿐만 아니라, 4atm에서도 매우 낮은 가스투과율을 나타내었다. 이것은 코팅된 전해질층이 치밀하다는 것을 의미하며, 고체산화물 연료전지의 전해질과 연료극의 요구조건을 충분히 만족시키는 것으로 판단된다. 향후 제작된 연료극지지체/전해질층 구조에 공기극의 코팅을 실시하여 단전지의 성능

을 조사할 예정이다.

참 고 문 헌

1. N.Q. Minh and T. Takahashi, "Science and Technology of Ceramic Fuel Cells," 3, Elsevier, Amsterdam (1995).
2. J.H. Hirschengerfer, D.B. Stauffer, R.R. Engleman, M.G. Klett, "Fuel Cell Handbook," 4, 5-1, (1998).
3. H.P. Buchkremer, U. Diekmann, L.G.j. de Haart, H. Kabs, D. Stover and I.C. Vinke, *Third European Solid Oxide Fuel Cell Forum*, 143 (1998).
4. F. Tietz, F.H. Dias and A. Naoumidis, *ibid.*, 171 (1998).
5. S.E. Veyo, C.A. Forbes, *ibid.*, 79 (1998).
6. S.C. Singhal, *Proceedings of the sixth international symposium on SOFC 99-19*, 39 (1999).
7. R-H Song, E.Y Kim, D.R Shin, H. Yokokawa, *ibid.*, 99-19, 845 (1999).
8. Korean Standard Testing Method for Ash in Graphite, KSL 3412 (1997).
9. R. Okuyama and E. Nomura, *Denki Kagaku*, 62 (4), 339 (1993).
10. L.J.M.J. Blomen and M.N. Mugerwa, "Fuel Cell Systems," 157, Plenum Press, New York (1993).