

Comparison of the Power Generating Characteristics of KIST- and FZ-Julich SOFCs

Hwa Young Jung, Sang Cheol Lee, Frank Tietz*, Hae-Ryoung Kim, Hae-Weon Lee, and Jong-Ho Lee[†]

Center for Energy Materials Research, KIST, Seoul 136-791, Korea

*Institute for Materials and Processes in Energy Systems, Forschungszentrum Julich, 52425 Julich, Germany

(Received November 7, 2007; Accepted November 21, 2007)

KIST와 FZ-Julich SOFC간의 출력성능 비교

정화영 · 이상철 · Frank Tietz* · 김혜령 · 이해원 · 이종호[†]

한국과학기술연구원 에너지재료연구단

*독일 울리히 연구소

(2007년 11월 7일 접수; 2007년 11월 21일 승인)

ABSTRACT

We evaluate and compare the power generating characteristics of the anode supported SOFCs which have been fabricated from KIST and FZ-Julich in Germany. The performance and electrochemical property of each unit cell was characterized at the temperature range of 650-850°C under same operating conditions and its microstructural property was thoroughly investigated via SEM after the performance test. According to the investigation, KIST- and FZJ SOFC showed different power generating characteristics in their temperature dependences due to their different design of electrode microstructure, especially the cathode microstructure. FZJ SOFC showed better performance at high temperature while showed lower performance at lower temperature. From the investigation about the correlation between microstructure and electrochemical property, we found that the superior performance of FZJ SOFC at high temperature was mainly due to its lower cathodic polarization resistance whereas better performance of KIST SOFC at lower temperature was mostly attributed to the lower ohmic resistance.

Key words : Anode supported SOFC, Unit cell, Performance

1. 서 론

고체산화물 연료전지(Solid Oxide Fuel Cell, SOFC)는 군용 휴대발전장치나 자동차 보조전원장치(APU; Auxiliary power units)와 같은 중소형 전원시스템으로부터 대형 열병합 발전시스템으로까지 매우 광범위한 분야에서 기존의 전원 또는 발전시스템을 대체할 차세대 에너지시스템으로 많은 주목을 받고 있다. 실제로 열전발전, 가스터빈 등과 연계한 복합발전 방식을 취하면 전력전환효율을 최고 80-90%까지 끌어올릴 수 있어 기존의 어떤 발전방식보다도 우수한 효율을 가진 시스템으로 기대되고 있다.¹⁾ 또한 SOFC는 높은 작동온도로 인해 고가의 외부개질 장치 없이도 다양한 연료를 이용하여 전기를 발생시킬 수 있으며 부수적으로 생기는 물과 열도 실생활에 유용하게 응용될 수 있을 정도의 고품질이어서 여러 면에서 많은 장점을 가지고 있다.¹⁻³⁾ 이와 같은 높은 에너지 효율과 환경친화적인 많은 장점으로 인해 고체산화물 연료전지는 기존의 PEMFC나 MCFC 등을 대체할 제 3세대 연료전지

라 일컬어지고 있다.

그러나 고체산화물 연료전지는 작동수명의 연장(낮은 성능 감소율, 더 높은 내구성), 고출력 밀도, 비용 절감 등과 같은 아직 해결되어야 할 많은 난제들이 남아있어 현재까지도 세계 각국에서 많은 연구가 진행되고 있는 상태이다. 그중 SOFC 기술의 상용화에 있어 최대 과제인 SOFC의 내구성과 경제성을 확보하기 위해 진행되고 있는 대표적인 연구는 무엇보다 SOFC 단전지의 작동온도를 낮춰 시스템의 장기안정성과 경제성을 확보하기 위한 노력에 집중되어 있는데 이를 위해 많은 연구자들이 저온에서도 우수한 성능을 구현할 수 있는 전해질 및 전극 재료를 개발하거나 운전환경에서 보다 안정된 내구성을 확보하기 위한 SOFC의 구조설계 분야에 연구역량을 집중시키고 있다.

현재 고체산화물 연료전지는 형태나 구조에 따라 여러 유형으로 분류될 수 있는데 그중에서도 연료극 지지형 평판형 단전지가 단위면적당 출력밀도가 가장 높고 대량생산에 가장 유리한 것으로 알려져 있다.^{1,2)} 이렇게 많은 장점을 가지고 있는 연료극지지형 평판형 단전지는 NiO-YSZ 지지체 위에 YSZ 전해질층을 형성시킨 후 공기극으로 LSM-YSZ 기능성층과 LSM ((La,Sr)MnO₃) 집전층을

[†]Corresponding author : Jong-Ho Lee

E-mail : jongho@kist.re.kr

Tel : +82-2-958-5532 Fax : +82-2-958-5529

Table 1. Specification of KIST, FZJ and FZJ-KIST Unit Cells

Structure	Anode substrate	AFL	Electrolyte	CFL	CCCL
Sample	NiO-YSZ	NiO-YSZ	YSZ	LSM-YSZ	LSM
KIST full cell	~1.0 mm LCP* (pre-sintered at 1100°C)	~10 μm SP*	~8 μm SP*	~20 μm SP*	~45 μm SP*
	Co-fired at 1400°C			Sintered at 1100°C	
FZJ full cell	~1.5 mm Coat-Mix (pre-sintered at 1200°C)	~6 μm VSC*	~10 μm VSC*	~10 μm SP*	~65 μm SP*
	Co-fired at 1400°C			Sintered at 1100°C	
FZJ-KIST combined cell	~1.5 mm Coat-Mix (pre-sintered at 1200°C)	~6 μm VSC*	~10 μm VSC*	~20 μm SP*	~45 μm SP*
	Co-fired at 1400°C (FZJ half cell)			Sintered at 1100°C (KIST cathode)	

*Notation: LCP; Liquid Condensation Process, SP; Screen Printing, VSC; Vacuum Slip Casting.

채용하는 구조가 가장 일반적인데 현재 연료극 지지형 평판형 단전지를 개발하는 가장 대표적인 기관으로 독일의 울리히 연구소 (Forschungs Zentrum Julich: FZJ)를 들 수 있다. 울리히 연구소(FZJ)는 현재 전세계적으로 가장 대면적의 단전지를 제조할 수 있는 기술을 확보하고 있으며 그 성능측면에서도 가장 앞서 있는 연구소라 할 수 있다. 국내에서는 연료극지지형 평판형 SOFC를 개발하는 대표적인 기관으로 전력연구원과 KIST를 들 수 있는데 특히 KIST는 FZJ와 제조공정이나 성능 등 여러 기술적인 측면에서 항상 비교가 되고 있다.

본 연구실에서는 SOFC 기술의 상용화에 있어 가장 핵심목표인 SOFC 단전지의 고성능화와 내구성 확보를 위해 세계적으로 가장 앞서있는 독일 FZJ와의 협력연구를 통해 최상의 단전지 기술을 확보하기 위한 노력을 하고 있다. 이를 위해 본 연구에서는 독일 FZJ와의 상호 교류를 통해 FZJ에서 제조한 단전지와 KIST에서 제조한 단전지, FZJ와 KIST 기술을 조합한 단전지를 제작하고 그 성능을 비교평가 하였으며 이로부터 단전지의 미세구조와 성능간의 상관관계를 파악하여 최적의 단전지 구조 설계방안을 도출해 내고자 하였다.

2. 실험 방법

2.1. 단전지의 구성 및 제조

본 연구에서는 독일 울리히 연구소에서 제조된 단전지 (FZJ cell)와 KIST의 단전지(KIST cell) 그리고 울리히 연구소와 KIST 기술을 조합한 단전지(FZJ-KIST combined cell) 등 3종류의 연료극(anode) 지지체형 단전지를 준비하였다. KIST 단전지의 경우 연료극의 출발원료로는 상용의 NiO (Sumitomo Chem., Japan)와 8 mol% YSZ (Tohso, Japan) 분말을 사용하였으며 이들 NiO와 YSZ 분말을

56:44 wt%의 비율로 혼합하여 일축가압 성형법으로 연료극 기판을 제조하였다. 성형된 연료극 기판은 1100°C에서 가소결(pre-sintering) 과정을 거친 후 그 위에 같은 조성의 연료극 기능성층(Anode functional layer; AFL)과 8YSZ로 이루어진 전해질층을 스크린 인쇄기법으로 인쇄한 후 1400°C에서 동시소성 하였다. 완성된 연료극/전해질 적층체 위에는 공기극 형성을 위해 기능성층(Cathode functional layer; CFL)으로 LSM-YSZ (50:50 vol% 비)를, 집전층(Cathode current collecting layer; CCCL)으로 LSM ((La_{0.7}Sr_{0.3})_{0.95}MnO_{3.8})을 4×4 cm의 크기로 스크린 인쇄하였으며 1100°C에서의 소결과정을 거쳐 최종적으로 5×5 cm의 크기를 갖는 단전지를 완성하였다. 보다 자세한 단전지 제조방법은 참고문헌 4에 나와 있다.

한편 독일 울리히 연구소의 단전지는 KIST와 동일하게 NiO-YSZ 연료극, YSZ 전해질 그리고 LSM-YSZ/LSM으로 이루어진 공기극 구조를 가지며 연료극이나 전해질의 조성에 있어서는 거의 동일한 조건을 가지나 공기극의 경우 KIST에서 사용된 (La_{0.7}Sr_{0.3})_{0.95}MnO_{3.8}에 비해 La이 다소 부족한 La_{0.65}Sr_{0.3}MnO₃ 조성이 사용 되었다. 울리히 연구소의 단전지에 대한 세부적인 조성 및 양론비, 기타 제조방법에 대한 자료는 참고문헌 5-7 등에 자세하게 보고되어 있다. 마지막으로 FZJ-KIST 단전지는 독일 울리히 연구소로부터 전해질까지 형성된 연료극지지체/전해질 (NiO-YSZ/YSZ) 반전지(half cell)를 받아 KIST에서 사용하는 공기극 전극(LSM-YSZ/LSM)을 스크린 인쇄한 후 1100°C에서 소결하여 완성하였는데 이러한 각기 다른 세 종류의 단전지에 대한 규격 및 주요 공정조건들을 Table 1에 정리하였다.

2.2. 단전지의 출력특성 평가

단전지들의 출력특성 평가를 위해 Inconel 601 판재를

가공하여 단전지 홀더를 제작하였다. 출력특성 평가를 위해 연료극 쪽에는 Ni망을 공기극에는 백금망을 집전체로 사용하였으며 평가시 연료극과 공기극 사이의 가스 기밀을 유지하기 위해 KIST에서 개발한 압축형 밀봉재를 단전지 평가 홀더에 맞게 절단하여 사용하였다. 측정에 들어간 단전지 평가시스템은 연료극의 환원을 위해 850°C에서 200 cc/min의 수소를 흘려주었으며 약 5시간 후 개회로 전압이 시간에 따라 더 이상 크게 변하지 않고 안정된 것을 확인한 다음 850~600°C 온도 범위에서 50°C 간격으로 출력특성을 측정하였다. 단전지의 출력특성 평가에는 50A 용량의 DC electronic loader(Scribner 890B, USA)를 이용하였으며 3% 물이 가습된 수소를 연료가스로 공기를 산화가스로 사용하였다. 단전지로 공급되는 연료 및 산화 가스는 자동유량조절기 (MFC, Sierra, USA)를 사용하여 조절하였으며 측정시 연료 가스 공급량은 600 sccm, 산화 가스는 연료가스에 대한 화학양론비를 1.7로 유지하게끔 공급하였다. 한편 단전지에서의 Ohmic 저항성분은 전류-전압 특성평가 중 전류차단법(Current interruption method)을 시행하여 구해내었으며 성능 평가가 끝난 단전지의 미세 구조는 주사전자현미경 (SEM, FEI XL-30 FEG, Netherlands)을 이용하여 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 단전지의 미세 구조

Fig. 1은 평가를 마친 후 SEM으로 관찰한 세 가지 종류의 단전지에 대한 파단면 사진이다. Fig. 1에 나타난 단전지의 파단면을 살펴보면 3종류의 단전지는 모두 연료극 지지층, 연료극 기능성층, 전해질, 공기극 기능성층, 공기극 집전층 등 총 5층으로 구성되어 있음을 알 수 있다. 먼저 KIST에서 제작한 단전지의 경우, 연료극 지지체의 미세구조는 FZJ 단전지에 비하여 입자가 더 미세하며 격자가 좀 더 균일하게 형성되어 있음을 볼 수 있는데 이에 따라 지지층내 기공의 크기 또한 상대적으로 미세하며 좀 더 균일하게 배열되어 있다. KIST의 연료극 기능성층(AFL)은 FZJ의 단전지(~6 μm)에 비하여 다소 두꺼운 ~10 μm 두께로 형성되어 있는 반면 전해질의 두께는 ~8 μm 로 FZJ 단전지(~10 μm)에 비해 얇고 치밀한 구조를 가지고 있었다. 한편 KIST 공기극의 경우 크게 LSM-YSZ 기능성층(CFL, ~20 μm)과 LSM 집전층(CCCL, ~45 μm)으로 구성되어 있는데 사진상으로는 구분이 되지 않으나 공기극 기능성층(CFL)은 다시 복합체에 사용한 YSZ의 크기가 서로 다른 (d_{50} ~30 nm인 분말과 d_{50} ~0.2 μm 인 분말) 두개의 층으로 구성되어 있다. 이렇게 두층으로 형성된 공기극 기능성층은 공기극의 삼상계면을 최대화하면서도 계면 접합성과 열팽창계수차를 최적화 시켜 장기운전 조건에서의 성능감소를 최소화 하고 열사이클과 같

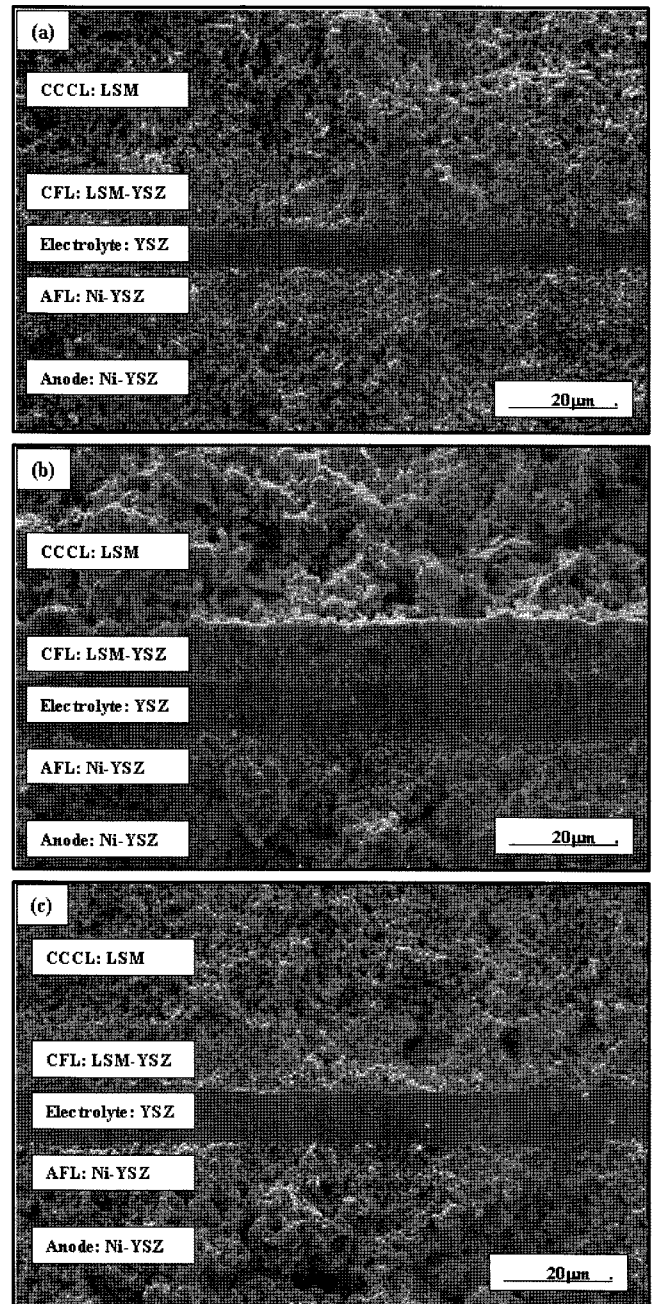


Fig. 1. SEM micrographs of the fractured surface of each unit cells after performance test; (a) KIST unit cell, (b) FZJ unit cell, and (c) FZJ-KIST unit cell.

은 극심한 운전조건에서의 열기계적 성능을 최적화하기 위한 설계였다. 한편 KIST 공기극의 LSM 집전층(CCCL)은 입자크기가 비교적 큰 분말(d_{50} ~2 μm)로 제조하여 가스 확산층(Gas diffusion layer)으로서의 역할까지 갖도록 구성하였다.

한편 Fig. 1(b)에 나타낸 FZJ 단전지의 미세구조에서 보면 연료극과 공기극의 미세구조가 KIST 단전지와 다소 차이를 보이고 있는데 특히 공기극 구조에서 큰 차이를

보인다. Fig. 1(a)와 (b)의 공기극 미세구조를 비교해 보면 FZJ 단전지의 경우 공기극 기능성층이 ~10 μm 정도로 KIST보다 얇은 두께를 가지는 반면 집전층의 두께는 ~65 μm로 다소 두껍게 형성되어 있다. 특히 집전층으로 쓰이는 FZJ의 LSM 층에는 분무건조법(Spray drying process)으로 LSM 분말을 합성시 발생하는 큰 구형의 입자 구조를 그대로 포함하고 있는데 이전 보고에 의하면 그 분말의 d_{90} 이 ~26 μm 정도로 매우 큰 크기를 가지고 있었다.⁷⁾ 이러한 두 기관간의 미세구조 차이는 이후 논의될 출력 성능에 큰 영향을 미치게 되는데 본 연구에서는 이러한 미세구조 차이가 단전지의 전기화학적 특성에 미치는 영향을 알아보기 위해 서로 다른 미세구조를 가지는 3종류의 단전지 성능을 동일한 작동 조건에서 평가해 보았다.

3.2. 단전지 출력 특성

3종류의 단전지들을 대상으로 600°C에서 850°C 온도구간에서 측정된 전류-전압 출력 특성 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 3종류의 단전지들은 모두 850°C에서 환원되었으며 평형상태에 도달한 후 50°C 간격으로 온도를 내려가면서 출력 특성을 측정하였다. 측정시 연료가스인 H₂(+3% H₂O)는 600 cc/min로 공급하였고 산화가스인 공기는 1000 cc/min로 공급하였다. 측정결과 3종류 단전지의 개회로전압(OCV; open circuit voltage)은 측정온도구간인 600~850°C 사이에서 약 1.08~1.30 V의 값을 보였으며 3종류 단전지에서 모두 안정적으로 나타났다. 측정결과 Fig. 2(a)에서 볼 수 있듯이 KIST 단전지는 850°C와 600°C에서 각각 1.08 W/cm²와 0.25 W/cm²의 최대 출력 밀도를 나타내었으며, Fig. 2(b)의 FZJ 단전지는 850°C와 600°C에서 각각 1.09 W/cm²와 0.17 W/cm²의 출력 밀도를 나타내 고온에서는 두 단전지가 거의 같은 수준의 출력을 보였으나 상대적으로 저온영역에서는 KIST 단전지가 더 높은 출력밀도를 나타내었다. 한편 Fig. 2(c)에 나타낸 FZJ-KIST 단전지의 경우엔 850°C와 600°C에서 각각 1.01 W/cm²와 0.20 W/cm²의 출력 밀도를 나타내어 고온에서는 KIST 단전지와 FZJ 단전지에 비해 낮은 출력을 보이며 저온영역에서는 KIST 단전지와 FZJ 단전지의 중간정도 특성을 나타내었다.

한편 일반적으로 연료전지가 운전되는 ~0.7 V 이상 전압조건에서의 출력특성을 살펴보면 KIST 단전지의 경우 활성화 분극(Activation polarization)이 지배하는 저전류밀도 영역에서의 셀전압이 오히려 단전지에 비해 낮게 유지되고 있는데 이는 활성화분극 영역에 가장 큰 영향을 미치는 공기극에서의 분극특성 차이 때문인 것으로 예상된다. 이러한 현상은 FZJ-KIST 단전지의 출력특성에서 확인해 볼 수 있는데 KIST 공기극을 사용한 FZJ-KIST 단전지의 경우 활성화 분극영역에서의 성능곡선이 FZJ 단

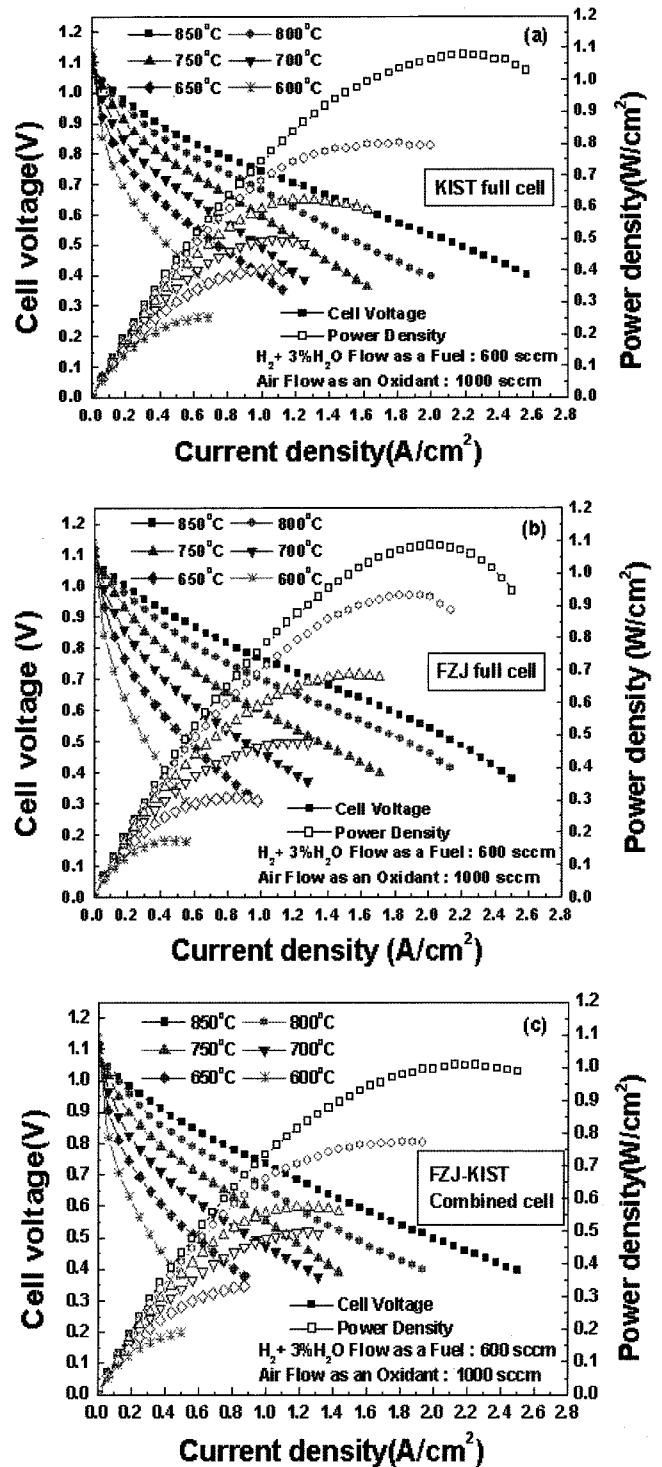


Fig. 2. Current-voltage characteristics of 5 × 5 cm² unit cells at the temperature range of 600-850°C (fuel gas: H₂ (3% H₂O) = 600 cc/min, oxidant: air = 1000 cc/min). (a) KIST unit cell, (b) FZJ unit cell, and (c) FZJ-KIST unit cell.

전지보다 KIST 단전지의 거동과 유사하게 나타나고 있어 이러한 예상을 충족시켜 주고 있다.

Fig. 3은 3종류의 단전지들에 대해 600-850°C 구간의 온

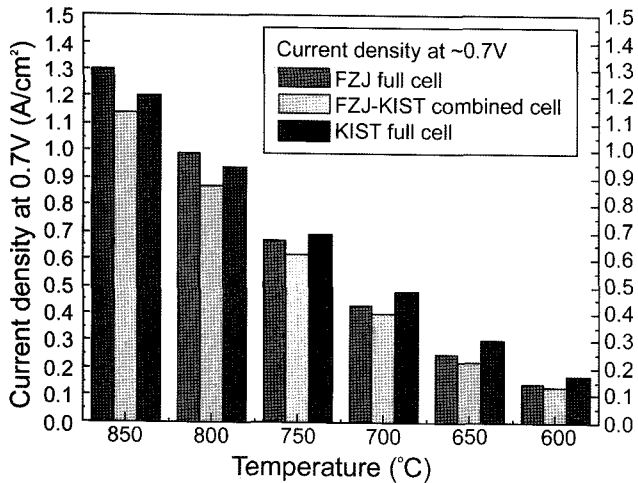


Fig. 3. Comparison of the current densities of each unit cell at 0.7 V operation condition (Temperature range of 600 ~ 850°C).

도영역에서 측정된 동일 전압조건(0.7 V)에서의 전류밀도를 비교한 그래프이다. Fig. 3의 그래프에서 보면 FZJ 단전지의 경우 KIST 단전지 보다 800°C 이상의 고온영역에선 높은 전류밀도를 보였으나 온도가 낮아질수록 KIST 단전지의 전류밀도보다 낮은 값을 보였으며 FZJ-KIST 단전지의 경우는 3종류의 단전지 중 가장 낮은 값을 보였다.

일반적으로 단전지의 성능 손실에 기여하는 단전지 ASR(Area Specific Resistance)은 분극 ASR(polarization ASR)과 ohmic ASR로 구분된다. 특히 ohmic ASR은 단전지 구성성분들에 의한 ohmic 저항과 단전지와 접속자간의 접촉저항 그리고 접속자 자체의 저항성분 등으로 구성되는데 본 연구에서는 모든 단전지에 대해 동일한 접속자를 사용하였기에 단전지간에 나타난 ohmic ASR의 차이는 주로 단전지 구성성분들에 의한 ohmic 저항차에 기인한 것으로 예상된다. 한편 단전지 구성성분들에 의한 ohmic 저항은 단전지를 구성하는 연료극, 전해질 및 공기극 성분으로 분류될 수 있는데 이러한 단전지의 ohmic 저항성분에 대한 분석결과를 Fig. 4에 정리하였다.

Fig. 4에 정리된 단전지의 ohmic 저항값을 토대로 단전지의 ohmic 저항성분에 대한 활성화에너지를 구해보면 KIST 단전지의 경우 측정온도 영역에서 0.57 eV, FZJ 단전지의 경우 0.75 eV 그리고 FZJ-KIST 단전지의 경우 0.68 eV의 활성화 에너지를 가지는 것으로 나타나는데 이러한 ohmic 저항성분의 활성화에너지차로 인해 Fig. 3에서와 같이 ohmic 성분의 활성화에너지가 작은 KIST 단전지의 출력밀도가 저온으로 갈수록 FZJ 단전지에 비해 높아지는 결과를 낳았다. 이와 같이 KIST 단전지의 ohmic 저항성분이 타 단전지에 비해 낮은 결과는 KIST 연료극 지지체와 전해질의 두께가 다른 단전지에 비해 얇고 연료극이나 공기극의 미세구조가 상대적으로 더 치밀한 구

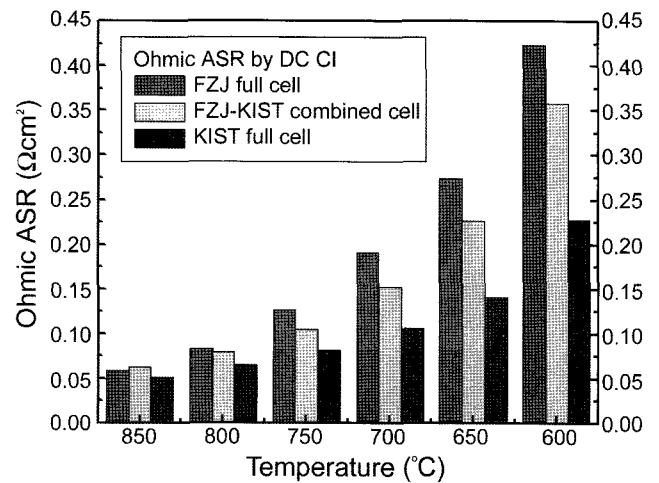


Fig. 4. Comparison of ohmic ASR obtained from DC current interrupting method (Temperature range of 600 ~ 850°C).

조를 가지고 있어 전극성분들에 의한 ohmic 저항 역시 낮았기 때문으로 보인다. 특히 FZJ-KIST 단전지와 FZJ 단전지의 ohmic ASR을 비교해 볼 때 단지 공기극성분만의 차이만 존재한다는 점을 고려해 볼 때 FZJ 단전지의 공기극성분에 의한 ohmic 저항이 KIST 단전지에 비해 크다는 것을 알 수 있다. 마찬가지로 FZJ-KIST 단전지와 KIST 단전지의 ohmic ASR을 비교해 보면 동일한 공기극을 채용하고 있다는 점을 고려해 볼 때 FZJ 단전지의 나머지 성분들에 의한 ohmic 저항 역시 KIST의 단전지보다 크다는 것을 알 수 있고 이로 인해 전체적으로 율리히 단전지의 ohmic 성분이 KIST에 비해 크음을 알 수 있었다. 이와 같이 단전지의 출력성능은 단전지의 ohmic 저항 성분과 전극반응에 의한 분극저항 성분에 의해 결정되는데 FZJ 단전지의 경우 고온영역에선 전극에서의 분극 저항이 작아 높은 출력을 보이나 ohmic 저항성분이 KIST 단전지에 비해 상대적으로 크기에 저온영역으로 갈수록 KIST 단전지보다 낮은 성능을 나타내게 된 것으로 보인다.

한편 또 다른 성능결정 인자인 FZJ-KIST 단전지와 FZJ 단전지의 분극저항 성분들을 비교해 보면 FZJ 단전지의 공기극이 보다 낮은 분극저항을 나타내는 것으로 나타나는데 이는 율리히 연구소에서 사용한 공기극이 더 좋은 전기화학적 활성을 가지기 때문으로 판단된다. 이러한 전기화학적 활성의 차이는 두 기관에서 사용한 공기극 물질자체의 활성차이 때문일 수도 있고 두 기관에서 제작한 전극의 미세구조차로 인해 전기화학적 활성의 차이가 나기 때문일 수도 있다.

이를 확인하기 위해 두 공기극의 차이점들을 좀더 자세히 살펴보면, 먼저 율리히 연구소와 KIST 공기극의 경우 구성에 있어서 차이가 있는데 율리히 연구소의 경우 공기극의 구성이 $\text{La}_{0.65}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 로 KIST의 $(\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3})_{0.95}\text{MnO}_3$ 공기극 조성보다 La의 양이 상대적으로 부족한 조

성을 사용한다. 그러나 조성이 다른 두가지 공기극 물질이 어느 정도 전기화학적 활성이 다른지에 대한 보고는 없으나 두 조성간 활성화 차이가 분극성능에 어느 정도 영향을 주었을 것으로 보인다. 한편 기능성 층의 경우 LSM-YSZ의 조성이 모두 50:50 vol%로 동일하며 두께도 10 μm 와 20 μm 로 큰 차이는 없어 분극성능에 있어서는 큰 차이를 보이지 않았을 것으로 예상된다. 특히 Wilkenhoner et al.⁸⁾은 기능성층(60:40 wt% 실험에서)의 두께가 10 μm 이하에서는 과전압이 증가하나 10~35 μm 사이의 두께인 경우 전기화학적 활성화에 큰 변화가 없다고 보고하고 있어 두 기관의 단전지에 있어 기능성층 두께의 차이에 따른 전기화학적 활성도의 차이는 크지 않을 것으로 예상된다. 반면 LSM 집전층의 경우 두 기관에서 제작한 공기극이 구조적으로 큰 차이를 보이는데 앞서 언급하였듯이 FZJ 공기극의 경우 전반적으로 입자 크기가 크고 두께가 KIST 공기극에 비해 두꺼운 상태이다. 앞선 V. A. C. Haanappel et al.⁷⁾의 보고에 따르면 공기극 집전층(CCCL)의 두께에 따라서도 공기극의 분극저항이 달라진다고 하였는데 집전층의 두께가 10-20 μm 수준에서 45-50 μm 정도로 증가하는 경우 전극 ASR이 약 20%까지 감소한다고 보고하였다. 또한 집전층을 구성하는 입자의 크기가 증가함에 따라 집전층내의 기공 크기가 증가함으로써 내부 기능성층(CFL)까지의 산소 확산을 용이하게 해 분극을 줄이는 효과를 얻을 수 있다고도 보고하였는데 이러한 관점에서 KIST 단전지의 집전층을 구성하는 입자크기($d_{50} \sim 2 \mu\text{m}$)를 고려하면 FZJ 단전지의 집전층(입자크기 $d_{50} \sim 11 \mu\text{m}$)에 비해 약 4.1%의 성능감소가 나타날 것으로 예상된다.

이상의 분석결과들을 종합해 보면 FZJ 단전지의 공기극은 기능성층을 구성하는 물질의 활성화도가 KIST의 경우보다 상대적으로 높거나 집전층의 미세구조가 분극 저항을 줄이는데 더 효과적이었기에 고온에서의 단전지 성능이 우수한 것으로 판단된다. 이러한 결과는 많은 연구자들로부터 단전지의 상용화에 공기극 전극의 최적화가 가장 중요한 부분이라는 지적과 일치하는 것이다.^{9,10)} 그러나 연료극에서의 분극성능 차이에 대해서는 추가적인 전기화학분석이 이어진 후 판단할 수 있을 것으로 보인다. 이를 위해 현재 교류 임피던스법을 이용한 단전지에서의 전기화학특성을 평가중이며 이러한 평가후에 보다 구체적으로 개별전극에서의 특성차를 구분해 낼 수 있을 것으로 예상된다.

또한 실제 단전지의 신뢰성을 결정하는 내구성차원에서 FZJ 단전지가 KIST 단전지보다 우세할지에 대해서도 추가적인 장기안정성 테스트와 내구성 테스트를 진행시킬 계획인데, 특히 KIST 단전지의 경우 오랜 기간 동안 단전지의 내구성 확보에 초점을 두고 단전지 구성성분간 접합력 향상 및 열팽창계수의 불일치를 극복하는 쪽으로

구조개발을 해오면서 성능손실은 어느 정도 감수해 왔기 때문에 평가 대상 단전지들에 대한 열기계적 안정성 및 내구성에 대한 평가까지 수행되어야만 최적의 단전지 구조설계가 가능할 것으로 판단된다.¹¹⁻¹⁸⁾ 이를 위해 현재 두 연구기관에서는 각기 제작된 단전지를 대상으로 동일한 조건에서 장기 성능 및 열기계적 특성에 관한 조사를 수행할 예정이며 이들의 결과를 바탕으로 단전지 구성성분별 최적의 조성 및 구조를 도출해 낼 예정이다.

4. 결 론

본 연구에서는 KIST와 독일 울리히 연구소에서 각기 제작한 연료극지지형 평판형 단전지와 두 연구기관의 기술을 조합해 제작한 FZJ-KIST 단전지의 성능을 비교 평가하였다. 평가 결과 KIST 단전지는 ohmic 저항은 낮으나 전극에서의 분극저항이 상대적으로 크게 나타났으며 FZJ 단전지는 전극에서의 분극저항은 낮았으나 ohmic 저항성분이 상대적으로 크며 활성화 에너지 또한 크게 나타나 중저온 영역에서의 성능이 KIST 단전지에 비해 낮게 나타났다. 두 단전지에서의 분극성능차이를 나타내는 주요인으로서 공기극에서의 분극성능 차이를 들 수 있는데 FZJ 단전지에서 채용한 공기극의 조성 및 구조가 KIST의 단전지보다 분극저항을 줄이는데 더 효과적이었기 때문으로 판단된다. 이상의 결과로부터 전기화학적인 측면에서의 최적의 단전지 구조는 KIST 단전지와 같은 치밀한 전극구조를 가져 자체 ohmic 저항과 계면저항을 줄일 수 있으면서 FZJ 단전지와 같이 전극에서의 전기화학반응을 최적화 할 수 있는 구조를 가지는 것이다. 이를 위해 전극 물질은 FZJ 단전지와 같이 자체 전기화학적활성이 좋은 재료를 선택하며 아울러 전류집전층이 전극에서의 반응물이나 생성물의 이동을 방해하지 않도록 통기성이 좋은 구조를 가지도록 해야 한다.

Acknowledgment

본 연구는 국가지정연구실 사업의 지원하에 KIST와 FZJ-Julich간 공동연구로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

REFERENCES

1. Nguyen. Q. Minh and T. Takahashi, "Science and Technology of Ceramic Fuel Cells," pp. 1-14, Elsevier Science, Amsterdam, 1995.
2. Nguyen. Q. Minh, "Ceramic Fuel Cells," *J. Am. Ceram. Soc.*, **76** [3] 563-88 (1993).
3. F. Sissine, "Fuel Cells for Electric Power Production: Future Potential, Fedral Role and Policy Options," pp.1-18 in Fuel

- Cells: Trends in Research and Applications, Ed. by A.J. Appleby, Hemisphere Pub. Co., 1987.
4. H. Y. Jung, T. W. Roh, J. Kim, H.-W. Lee, H. Ko, K. C. Lee, and J.-H. Lee, "Power Generating Characteristics of Anode-Supported SOFC Fabricated by Uni-Axial Pressing and Screen Printing(*in Korean*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **41** [6] 456-63 (2004).
 5. F. Tietz, Q. Fu, V. A. C. Haanappel, A. Mai, N. H. Menzler, and S. Uhlenbruck, "Materials Development for Advanced Planar Solid Oxide Fuel Cells," *Int. J. Appl. Ceram. Technol.*, **4** [5] 436-45 (2007).
 6. V. A. C. Haanappel, J. Mertens, and A. Mai, "Performance Improvement of (La, Sr)MnO₃ and (La, Sr)_x(Co, Fe)O₃-Type Anode-Supported SOFCs," *J. Fuel Cell Sci. and Technol.*, **3** 263-70 (2006).
 7. V. A. C. Haanappel, J. Mertens, D. Rutenbeck, C. Tropartz, W. Herzhof, D. Sebold, and F. Tietz, "Optimization of Processing and Microstructural Parameters of LSM Cathodes to Improve the Electrochemical Performance of Anode-supported SOFCs," *J. Power Sources*, **141** 216-26 (2005).
 8. R. Wilkenhoner, W. Mallener, H. P. Buchkrenmer, Th. Hauber, and U. Stimming, in: B. Thorstensen (Ed), pp. 279-288, Proceeding of the Second European Solid Oxide Fuel Cell Forum, Oslo, Norway, May 6-10, 1996.
 9. B. Wei, Z. Lu, S. Li, Y. Liu, K. Liu, and W. Su, "Thermal and Electrical Properties of New Cathode Material Ba_{0.5}Sr_{0.5}Co_{0.8}Fe_{0.2}O_{3-δ} for Solid Oxide Fuel Cells," *Electrochem. and Solid-State Lett.*, **8** [8] A428-31 (2005).
 10. T. Tsai, E. Perry, and S. Barnett, "Low-Temperature Solid Oxide Fuel Cells Utilizing Thin Bilayer Electrolyte," *J. Electrochem. Soc.*, **144** [5] L130-L32 (1997).
 11. J. D. Kim, G.D. Kim, J. W. Moon, and C. E. Kim, "Preparation of (La, Sr)MnO₃ Powder by Glycine-Nitrate Process Using Oxide as Starting Materials(*in Korean*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **34** [10] 1003-08 (1997).
 12. J. D. Kim, G. D. Kim, and J. A. Park, "The Effect of Particle Size and Ratio of LSM-YSZ Powders on SOFC cathode properties(*in Korean*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **37** [3] 227-32 (2000).
 13. J.-H. Lee, G. D. Kim, Y. B. Sohn, H.-W. Lee, S. W. Kim, H. S. Song, and G. H. Kim, "Power Generating Characteristics and Long Term Stability of the Anode Supporting Type SOFC(*in Korean*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **37** [9] 847-55 (2000).
 14. H. Moon, H.-W. Lee, J.-H. Lee, and K.-H. Yoon, "Correlation between the Microstructure and the Electrical Conductivity of SOFC anode, Ni-YSZ: I. Microstructure Analysis(*in Korean*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **37** [5] 479-90 (2000).
 15. H. Moon, H.-W. Lee, J.-H. Lee, and K.-H. Yoon, "Correlation between the Microstructure and the Electrical Conductivity of SOFC anode, Ni-YSZ: II. Temporal Variation(*in Korean*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **37** [12] 1140-45 (2000).
 16. J.-W. Moon, G. D. Kim, K.-T. Lee, and H.-L. Lee, "Effect of YSZ Particle Size and Sintering Temperature on the Microstructure and Impedance Property of Ni-YSZ Anode for Solid Oxide Fuel Cell(*in Korean*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **38** [5] 466-73 (2001).
 17. J. W. Heo, D. S. Lee, J.-H. Lee, J. D. Kim, J. Kim, H.-W. Lee, and J. H. Moon, "Effect of the Pore Structure on the Anodic Property of SOFC(*in Korean*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **39** [1] 86-91 (2002).
 18. H. Y. Jung, K.-S. Hong, H.-G. Jung, H. Kim, H.-R. Kim, J.-W. Son, J. Kim, H.-W. Lee, and J.-H. Lee, "SOFCs with Sc-Doped Zirconia Electrolyte and Co-Containing Perovskite Cathodes," *J. Electrochem. Soc.*, **154** [5] B480-85, (2007).