

## 세라믹 분리판

가. 세라믹 분리판 부품소재의 정의 및 특성

### 1) 세라믹 분리판의 개요

무공해, 고효율 발전과 같은 많은 장점을 가진 고체산화물 연료전지(Solid Oxide Fuel Cell, SOFC)는 에너지 이용 효율 향상, 공해문제 해결 및 신 에너지 기술개발의 요구에 따라서 정지형 발전시스템, 소형 독립전원 및 자동차 동력원으로 개발이 활발히 이루어지고 있다. SOFC는 탄화 수소계의 다양한 연료를 내부 개질하여 사용하기 때문에 PEMFC 등과 같은 저온형의 다른 연료전지보다 연료 시스템이 간단하다. 또한 고온 작동에 따른 열과 미반응 연료를 열병합 발전 혹은 가스터빈과의 혼합발전에 이용할 수 있기 때문에 발전 효율을 높일 수 있다.

현재 SOFC의 구성 재료인 연료극, 전해질, 공기극, 분리판, 밀봉재 기술 분야에서는 각 구성요소와 전해질의 동일한 열팽창계수, 고온 열 사이클에 대한 내구성, 화학적 안정성, 전기화학적 활성, 장기 안정성과 신뢰성을 갖는 소재 개발이 진행되고 있다

SOFC 시스템에 사용되는 대용량의 스택으로 제작하기 위해서는 전해질과 전극으로 이루어진 각 단위전지의 전기적 연결, 공급하는 연료와 공기의 격리, 기계적 지지체 역할을 하는 분리판(separator)을 개발하는 것이 절대적으로 필요하다.

원통형 SOFC 스택을 구성하는 경우에 기본 요소인 단위전지를 전기적으로 연결하고 얻어지는 전기출력의 통로 역할을 하는 구성요소를 연결재(interconnect)라고 부른다. 또한 평판형 스택을 구성하는 경우에 단위전지를 연결하고 공급하는 연료가스(fuel)와 산화제(air)가 서로 만나지 않도록 서로 격리시키는 역할을 하는 구성요소가 필요한데 이러한 구성 재료를 분리판(separator)이라고 부른다. 본 보고서에서는 이러한 구성 재료를 분리판이란 용어로 통일하여 사용하고자 한다.

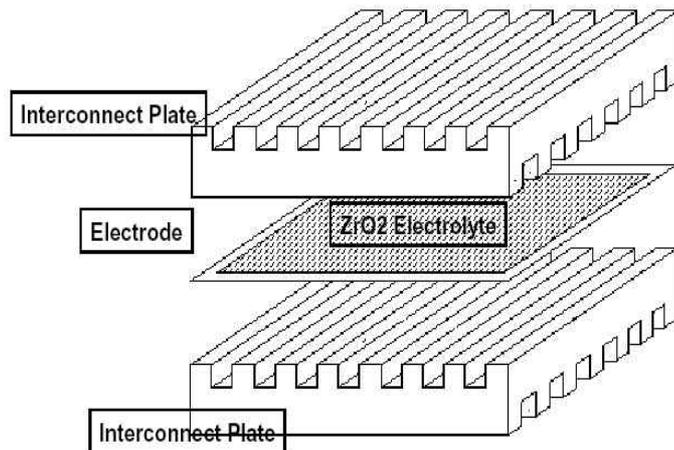


그림.1. SOFC의 기본 구성요소인 단위전지(전해질과 전극)와 분리판

분리판 재료들은 다음과 같은 조건들을 구비하여야 연료전지에 사용할 수 있다.

- 다른 SOFC 구성 부품과의 열팽창 일치.
- SOFC 작동 산소분압( $p_{O_2} = 0.2 \sim 10^{-18} \text{ atm}$ )에서의 높은 안정성.

- 우수한 전자 전도성(1S/cm 이상)(공기 및 연료 분위기).
- 낮은 산소이온 전도성(공기 및 연료 분위기).
- 치밀질이고 가스 누출이 없을 것.
- 다른 구성 재료와 반응하지 않을 것.
- 저렴한 재료비 및 가공비.

분리판 재료는 SOFC 스택을 제조하는데 필요한 핵심 재료 중의 하나이며, 세라믹 혹은 금속 재료가 주로 사용되고 있으며, 금속 재료를 사용하는 경우에는 세라믹 재료를 금속재료 위에 코팅하는 복합체 분리판도 개발되고 있다. SOFC 본체를 구성하는 전극, 전해질, 분리판 및 기타 부품을 가격의 기준으로 비교하면 분리판이 거의 45% 이상의 비중을 차지하는 필수 소재이다. SOFC 스택을 개발하는데 필요한 세라믹 분리판의 문제점을 극복하기 위한 많은 연구들이 이루어지고 있다.

표.1. SOFC용 분리판 재료와 제조공정

종류	재료	제조 공정
세라믹 분리판	Ceramic perovskite materials [예](La <sub>1-x</sub> M <sub>x</sub> )(Cr <sub>1-y</sub> N <sub>y</sub> )O <sub>3</sub> , M=Sr, Ca, N=Co, Al, Mg, Ni, V	가압 성형, 사출 성형, 주입 성형, 기계 가공, 열간 가압 성형, Plasma spray 등
금속 분리판	Cr-alloy, Fe-alloy, Ni-alloy	분말야금, 용융 성형, 기계 가공, coating 등

## 2) 세라믹 분리판의 구성

SOFC용 세라믹 분리판 재료로는 일반적으로 LaCrO<sub>3</sub>계 perovskite형 산화물이 사용된다. 이들 재료의 구체적인 조성은 (La<sub>1-x</sub>M<sub>x</sub>)(Cr<sub>1-y</sub>N<sub>y</sub>)O<sub>3</sub>이며, 여기에서 M은 Sr, Ca가 주로 사용되고 N은 Mg, Al, Co, Ni, V 등이 사용된다. M 혹은 N 자리에 치환 고용시키는 원소의 치환량과 종류에 따라서 재료의 전도율, 소결성, 열팽창 계수 등의 특성이 변한다. 대표적인 예로 LaCrO<sub>3</sub>계 재료의 전기전도도와 열팽창계수를 [표.2.]에 나타내었다. 각종 세라믹 분리판 재료는 높은 작동온도(900~1000℃)에 적합하며, 전자 전도도가 온도에 따라서 크게 달라진다.

표.2. 대표적인 예로 LaCrO<sub>3</sub>계 재료의 전기전도도와 열팽창계수

Composition	Electrical conductivity (S/cm)	Composition	Average TEC (×10 <sup>6</sup> /℃)
LaCrO <sub>3</sub>	0.34(700℃) 1.0(1000℃)	LaCrO <sub>3</sub>	9.5
LaCr <sub>0.9</sub> Mg <sub>0.1</sub> O <sub>3</sub>	3.0(1000℃)	LaCr <sub>0.9</sub> Ni <sub>0.1</sub> O <sub>3</sub>	10.1
La <sub>0.9</sub> Sr <sub>0.1</sub> CrO <sub>3</sub>	14(1000℃)	LaCr <sub>0.8</sub> Ni <sub>0.2</sub> O <sub>3</sub>	11.2
La <sub>0.95</sub> Ca <sub>0.05</sub> CrO <sub>3</sub>	2.3(700℃)	LaCr <sub>0.7</sub> Ni <sub>0.3</sub> O <sub>3</sub>	11.8
		LaCr <sub>0.9</sub> Mg <sub>0.1</sub> O <sub>3</sub>	9.5
La <sub>0.95</sub> Sr <sub>0.05</sub> Cr <sub>0.5</sub> Co <sub>0.5</sub> O <sub>3</sub>	63(700℃)	La <sub>0.9</sub> Sr <sub>0.1</sub> CrO <sub>3</sub>	10.7
La <sub>0.8</sub> Ca <sub>0.2</sub> CrO <sub>3</sub>	7.1(700℃) 35(1000℃)	La <sub>0.65</sub> Ca <sub>0.35</sub> CrO <sub>3</sub>	10.8

$\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{Cr}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3$	9.2(700 °C)	$\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{Cr}_{0.9}\text{Co}_{0.1}\text{O}_3$	11.1
$\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{Cr}_{0.8}\text{Ni}_{0.2}\text{O}_3$	18(700 °C)	$\text{LaCr}_{0.9}\text{Co}_{0.1}\text{O}_3$	13.1
$\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{CrO}_3$	18(700 °C)	$\text{LaCr}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{O}_3$	14.6
$\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Cr}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{O}_3$	45(700 °C)	$\text{LaCr}_{0.6}\text{Co}_{0.4}\text{O}_3$	18.7
$\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Cr}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_3$	85(700 °C)	$\text{LaCr}_{0.2}\text{Co}_{0.8}\text{O}_3$	20.9
$\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{CrO}_3$	15(700 °C)	$\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Cr}_{0.2}\text{Co}_{0.8}\text{O}_3$	19
$\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Cr}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_3$	58(700 °C)	$\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Cr}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_3$	19
$\text{LaCr}_{0.6}\text{Ni}_{0.4}\text{O}_3$	26(700 °C)	$\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Cr}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{O}_3$	14.5
$\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CrO}_3$	21.8(1000 °C)	$\text{La}_{0.87}\text{Sr}_{0.1}\text{Cr}_{0.95}\text{Cu}_{0.05}\text{O}_3$	9.81
$\text{La}_{0.87}\text{Sr}_{0.1}\text{Cr}_{0.95}\text{Cu}_{0.05}\text{O}_3$	23.9(1000 °C)	$\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{Cr}_{0.98}\text{Cu}_{0.02}\text{O}_3$	9.91
$\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{Cr}_{0.98}\text{Cu}_{0.02}\text{O}_3$	32.5(1000 °C)	$\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Cr}_{0.93}\text{Mg}_{0.05}\text{Cu}_{0.02}\text{O}_3$	9.61
$\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Cr}_{0.95}\text{V}_{0.05}\text{O}_3$	9.7(1000 °C)	$\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Cr}_{0.95}\text{V}_{0.05}\text{O}_3$	9.87
$\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{Cr}_{0.95}\text{V}_{0.05}\text{O}_3$	19.9(1000 °C)	$\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Cr}_{0.92}\text{V}_{0.05}\text{Co}_{0.03}\text{O}_3$	10.4
$\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Cr}_{0.9}\text{Mg}_{0.05}\text{V}_{0.05}\text{O}_3$	15.2(1000 °C)	$\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{Cr}_{0.95}\text{V}_{0.05}\text{O}_3$	10
$\text{La}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{Cr}_{0.85}\text{Mg}_{0.1}\text{V}_{0.05}\text{O}_3$	12.9(1000 °C)	$\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Cr}_{0.9}\text{Mg}_{0.05}\text{V}_{0.05}\text{O}_3$	9.64
$\text{La}_{0.87}\text{Sr}_{0.1}\text{Cr}_{0.935}\text{Cu}_{0.05}\text{Co}_{0.015}\text{O}_3$	25.6(1000 °C)	$\text{La}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{Cr}_{0.85}\text{Mg}_{0.1}\text{V}_{0.05}\text{O}_3$	9.22
$\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{Cr}_{0.935}\text{V}_{0.05}\text{Co}_{0.015}\text{O}_3$	22.9(1000 °C)	$\text{La}_{0.87}\text{Sr}_{0.1}\text{Cr}_{0.935}\text{Cu}_{0.05}\text{Co}_{0.015}\text{O}_3$	10.4
$\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Cr}_{0.92}\text{V}_{0.05}\text{Co}_{0.03}\text{O}_3$	12.8(1000 °C)	$\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{Cr}_{0.935}\text{V}_{0.05}\text{Co}_{0.015}\text{O}_3$	10.5

(출처: W.Z. Zhu, S.C. Deevi, Materials Science and Eng., A348, 227-243 (2003))

[표.2.]의 결과들을 종합하여 관찰하여보면 전도도와 열팽창계수가 고용되는 원소의 종류에 따라서 다음과 같이 달라지는 것을 알 수 있다.

- Co : 전기전도도 증가, TEC 증가.
- Fe : 전기전도도 증가, TEC 감소.
- Ni : 전기전도도 증가, Co 경우보다 안정성이나 고용량이 낮음.
- Mg : 전기전도도 증가, TEC 감소.
- Cu : 전기전도도 증가, TEC 증가.
- Sr, Ca : 전기전도도 증가, TEC 증가.
- V : 전기전도도 감소, TEC 감소.

그리고 SOFC용 분리판 재료로 많이 사용되고 있는 대표적인  $\text{LaCrO}_3$ 계 재료의 일반적인 특징들을 예로 들어서 [표.3.]에 요약하였다.

표.3. 대표적인 LaCrO<sub>3</sub>계 재료의 일반적인 특징 비교

	순수 산화물	Mg 고용체	Ca 고용체	Sr 고용체
고용성	-	적음	큼	큼
첨가 원소	없음	-	과잉 Ca	CoO
소결성(공기중)	낮음	낮음	우수	낮음
열팽창	YSZ보다 적음	YSZ보다 적음	YSZ와 유사 (x=0.3)	YSZ와 유사
부피 변화 (환원 분위기)	없음	적음	큼	비교적 적음
전기 전도도		낮음	높음	높음
산소 투과도		적음	상대적으로 큼	적음
적용 가능 스택	-	원통형 적용 YSZ/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 사용 후 평판형 적용	원통형 적용	Co, V 추가 고용 후 평판형 적용

이들 LaCrO<sub>3</sub>계 세라믹 분리판 재료는 소결성이 낮기 때문에 이를 해결하기 위하여, CrO<sub>3</sub>(g)의 증기압 (vapor pressure)을 낮추고 액상을 형성시키는 기술이 시도되었다. 그 일례로 Ca-고용 LaCrO<sub>3</sub>는 과잉의 CaO를 첨가한 경우에 대기 분위기 하에서 우수한 소결성을 보인다. 그러나 Sr-고용 LaCrO<sub>3</sub>계는 이와 달리 2차상으로 석출된 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 La(OH)<sub>3</sub> 상으로 되어 체적팽창 문제를 일으킬 수 있다. LaCrO<sub>3</sub>는 넓은 산소 분압 범위에 걸쳐서 안정하며, 고용 원소의 양과 종류에도 영향을 받게 된다. LaCrO<sub>3</sub>계에 NiO나 CoO를 첨가하여 소결성을 향상시키려는 시도도 이루어지고 있다.

고용된 알칼리 희토류계 산화물은 대기 분위기에서 홀(hole)을 형성시켜서(4가 Cr 이온의 작용) 전자 전도도를 높이게 된다. 그러나 산소 분압이 낮아지면, 4가의 Cr 이온이 3가의 Cr 이온으로 바뀌면서 산소 이온 공공이 형성되어 체적 팽창을 일으킨다. Ca-고용 LaCrO<sub>3</sub>와 Sr-고용 LaCrO<sub>3</sub>가 동일한 산소 분압 영역에 놓이더라도 체적변화에는 서로 차이가 있다. Ca-고용 LaCrO<sub>3</sub>는 부피변화가 크게 되어 평판형 SOFC에 적용하기에는 어려운 점들이 있지만 원통형에는 적합하며, Sr-고용 LaCrO<sub>3</sub>는 이에 비하여 부피변화가 작다. 이러한 부피변화를 방지하기 위하여 Ti<sup>4+</sup> 혹은 Zr<sup>4+</sup>를 첨가할 수 있으며, 이에 대한 예를 [그림. 2.]에 나타내었다.

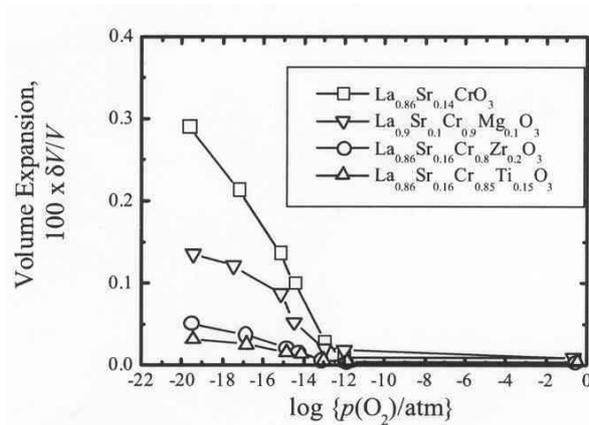


그림. 2. 산소 분압에 따른 LaCrO<sub>3</sub>계 분리판 재료의 체적변화(1273K)  
(출처: Fuel Cells, 1(2), 117-131 (2001)).

금속 분리판은 세라믹 분리판에 비하여 다음과 같은 장점을 가지고 있다.

- 열전도도가 좋아 온도분포가 균일해지고, 열응력을 저감 가능.
- 기계적 강도가 우수함.
- 가스투과가 없음.
- 전기전도도가 높음.

분리판용 금속 재료로는 Cr계, Ni계 혹은 Fe계의 합금이 주로 사용되고 있다. 금속 분리판 재료는 낮은 작동온도(650~800℃)에 적합하다.

금속 분리판 재료는 다음과 같은 해결해야 할 문제점들이 있다.

- YSZ 전해질과의 열팽창계수 불일치 : 이 문제를 해결하기 위한 방법의 하나는 YSZ와 열팽창계수가 동일한 새로운 합금을 개발하는 것이며, Siemens/Plansee사는 Cr-5Fe-1Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 합금을 개발하였다. 다른 방법은 상용합금을 사용하는 경우이다. 이때는 낮은 작동이 필요하며, 1073K 이상이 될 때는 열팽창계수가 일치하지 않게 된다.
- 크롬(Cr)에 의한 공기극의 오염 : 대기분위기, 특히 가습 조건에서 크롬 증발은 공기극 측에 심각한 문제가 된다. 휘발되는 크롬 성분은 (La, Sr)MnO<sub>3</sub>(LSM)/YSZ/가스의 3상 계면에 증착되어 공기극의 활성을 현저히 감소시킨다. 최근에 Tokyo Gas사는 3상 계면에서 산소 분압 차이를 많이 일으키지 않는 공기극 재료를 적용하여 이러한 크롬 오염을 낮추거나 없앨 수 있다고 발표하고 있다.
- 전자전도도가 높고 양이온 확산계수가 매우 낮은 세라믹 재료를 코팅하여 산화속도를 저하 : 평판형 셀에서 금속 분리판은 전자전도도가 높아야 하므로 낮은 양이온 확산계수와 높은 전자전도도를 가진 세라믹 재료를 코팅하거나 적절한 원소를 첨가하는 방법이 있다. 이러한 일례로써 산화속도를 감소시키고, 세라믹/금속 계면 안정성을 높이기 위하여 희토류 원소를 첨가하는 방법이 있다. 통상의 경우 5,000시간 정도의 장기 작동 후에는 내부의 산화물들이 연속 층을 형성하는 경향이 있으며, 이에 의하여 계면저항이 증가한다.

분리판은 스택을 구성할 때 여러 종류의 밀봉재료(sealing material)와 직접 접촉하며, 세라믹 유리(glass-ceramic) 밀봉 재료에는 실리카 이외의 많은 양의 알칼리 혹은 알칼리 희토류 산화물이 함유되어 있으므로 이들이 스택내로 이동(migration)하여 분리판과 전해질 등 다른 셀 구성요소와 반응하는 경향이 있다. 밀봉재의 실리카 성분은 공기극, 전해질 및 분리판 표면으로 이동할 수 있으며, 공기극 및 분리판의 La, Sr 산화물과 같은 염기성 산화물과 반응성이 있어 재료의 표면에 심각한 문제를 일으켜 성능 저하의 원인이 될 수 있다.

### 3) 세라믹 분리판의 특성

#### 가) 세라믹 분리판의 기술적 특성

- 현재 개발된 250kW급 및 수 kW급의 연료전지 스택에는 모두 분리판이 사용되고 있으며, 이들 분리판은 주로 세라믹 분리판, 금속 분리판 혹은 복합 재료들로 구성되고 있다. 이들 부품에 대한 내구성, 고전도성 등의 기술 향상이 절실히 요구되고 있다.
- 세라믹 분리판으로 주로 사용되는  $\text{LaCrO}_3$ 계 perovskite형 산화물은 낮은 소결성( $\text{CrO}_3$  증발에 의한)과 이에 따른 고온 소결온도( $1700^\circ\text{C}$ )가 문제점으로 나타나며,  $\text{La}_{0.85}\text{Ca}_{0.15}\text{CrO}_3$ 의 산소분압에 따른 평형 증기압을 고려하여  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  증발 응축을 일으키는 원인이 되는  $\text{CrO}_3$ 의 분압이 낮은 조건에서 분리판을 소결하는 기술도 제안되었다[그림.3.]. 그리고 또한 재료비도 비교적 고가이다. 이와 같은 문제점들을 해결하기 위하여 저 용점 공융을 일으키는 산화물을 첨가하여 액상소결을 유도하는 기술이 적용되고 있다. 즉 Ca이나 Co를 치환시키면 액상소결이 이루어지며, 소결온도가 약  $1450^\circ\text{C}$ 로 낮아지며 Sr을 사용하는 경우( $10\text{S}/\text{cm}$ )보다 전도도가 더 높다( $30\text{S}/\text{cm}$  이상).

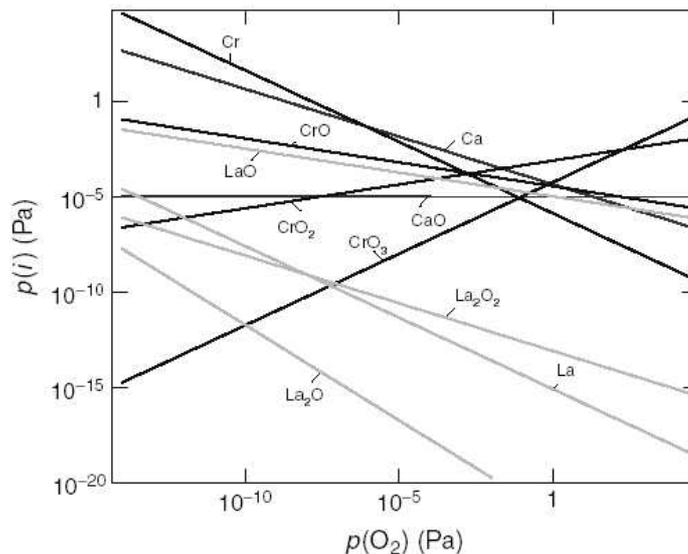
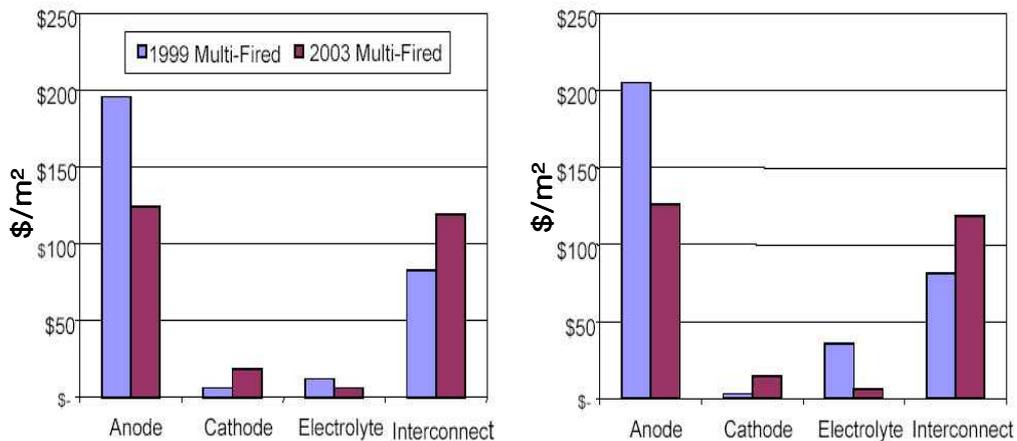


그림. 3. 산소 분압에 따른  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 의 부족 조성인  $\text{La}_{0.85}\text{Ca}_{0.15}\text{CrO}_3$ 의 평형 증기압( $1873\text{K}$ ) (K. Hilpert et al., Interconnects, ed. W. Vielstich, Handbook of Fuel Cells, V. 4, Part 8, pp 1073-1054, John Wiley & Sons, Chichester, 2003)

- 고내구성 및 고전도성의 대면적 분리판에 대한 기술 개발이 시급하다. 분리판 재료는 연료전지에서 연료와 공기가 반응하는 양쪽의 전극에 동시에 접하여 사용되므로 상이한 분위기에서 화학적으로 안정하고 다른 인접 재료와 친화성을 가져야 하며 또한 전기적 연결에 필수적인 고전도성도 유지하여야 하므로 고내구성이면서 고전도성을 유지하는 대면적 분리판 기술 개발이 절실히 요구된다.
- 높은 작동온도(800~1000℃)와 넓은 산소분압 영역( $pO_2 = 0.2 \sim 10^{-18} \text{ atm}$ )에서 전도성을 유지하는 재료의 개발이 필요하다. 산화 및 환원 분위기에서 재료의 상안정성 및 화학적 안정성이 높은 재료의 개발이 필요하다. 인접한 연료극 및 양극 재료와 열팽창 특성(YSZ :  $10 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ )이 유사하고 이들 재료와의 반응성이 낮은 소재의 개발이 절실히 요구된다.
- 치밀질의 저가 분리판 제조 공정에 대한 기술 개발이 필요하다. 연료전지 스택의 연료와 공기를 분리할 수 있는 치밀질이며 고온강도가 유지되는 재료이면서 제조 원가가 저렴한 생산 공정 기술의 개발이 필요하다. 또한 종합적 연구체제 구축만이 최선의 방법이기 때문에 정부주도의 연구투자가 절대적으로 필요하다.

나) 세라믹 분리판의 경제적 특성

- 미국 에너지성(DOE)에서는 SOFC 기술의 상용화를 위하여 SECA 프로그램을 진행하고 있는데, 여기에서는 2010년에 SOFC 시스템 제작비의 목표치를 \$400/kW로 잡고 있다.
- 이 프로젝트에서는 스택 재료, 즉 단위전지(연료극, 공기극, 전해질)와 분리판 재료에 대하여 모델을 적용하고 있다. 그리고 대량 생산은 5kW 스택을 모듈로 제작하는 250MW를 기준으로 삼고 있다. [그림. 4.]은 Co-fired와 Multi-fired에 따른 각 구성 요소의 재료비를 1999 모델과 2003 모델을 서로 비교한 것이다.



(a) Co-Fired

(b) Multi-Fired

그림. 4. 연료전지용 2003 모델을 사용한 각 부품의 재료비 비교

(E.J. Carlson, 1st Int'l Conference on Fuel Cell Development and Deployment, 2004).

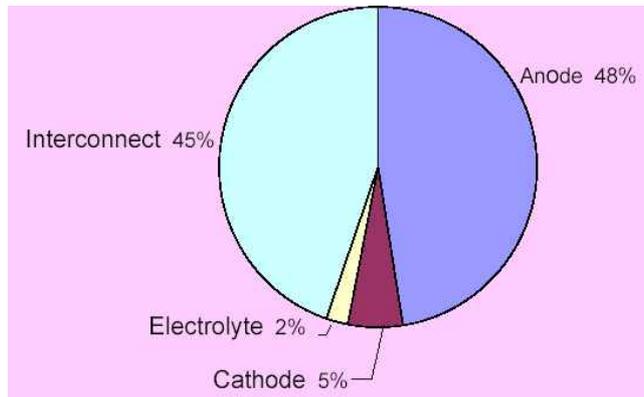
- 2003 모델에서는 1999 모델에서와는 달리 전해질(YSZ) 비용의 대량 감소로 인하여 전체 재료비

가 감소하는 결과를 나타냈다[표. 4.]. 그리고 공정비에 대한 계산에서는 2003 모델에서는 품질관리(QC) 공정, 최종 조립 공정과 수율 감소로 인하여 60~75% 정도의 비용 증가 현상이 나타났다.

표. 4. 연료전지용 2003 모델과 1999 모델의 각 부품의 재료비 비교

Material cost(\$/m <sup>2</sup> )	Co-Fired	Multi-Fired
1999 Model	296	326
2003 Model	267	265

- 스택을 구성하는 각 구성 요소의 재료비를 도표와 표로 [그림. 5.]에 나타낸 것이다. 여기에선 전체 스택에서 재료비가 차지하는 비중은 약 60%이고, 분리판 재료의 중량이 가장 높지만, 연료극(anode) 재료의 재료비가 가장 고가이므로 연료극의 재료비 비중이 가장 높게 나타났다.
- 2003 모델에서는 재료비가 감소하였지만 공정비가 증가하여 \$/kW와 \$/m<sup>2</sup>의 비용이 유사하게 나타났다. 그리고 스택 가격은 공정 효율 향상(결함 1% 이하)과 대량 생산(250MW)에 의하여 약 80% 정도까지 낮아질 수 있다는 결과가 얻어졌다.



	가격(\$/m <sup>2</sup> )	
	재료	전체
Anode	126	136
Cathode	15	22
Electrolyte	6	12
Interconnect	119	138
Fabrication		126
계	266	434

그림. 5. SOFC용 부품의 재료비 비교(\$/m<sup>2</sup>), (E.J. Carlson, 1st Int'l Conference on Fuel Cell Development and Deployment, 2004)

나. 국내외 산업 현황 분석

1) 국내외 관련업체 규모 및 현황 분석

- 세라믹 분리판을 포함한 SOFC 부품은 미래 산업의 창출을 위한 제품으로써 현재까지 시장은

형성되지 않고 있다.

- 선진국 업체들의 경우 활발한 연구 활동을 통하여 일부 시제품을 개발하고 있으나 아직까지는 소량을 주문 생산하여 연구용으로 공급하고 있다.

## 2) 국내 및 세계 시장 분석 및 전망

- SOFC 부품은 기존 시장 진입을 위한 제품이 아닌 신규 시장 창출을 위한 제품이며, 따라서 이와 관련된 국내 시장 분석은 기존의 형성 시장과 관련된 데이터 분석보다는 미래의 창출 가능한 시장 분석 차원에서 이루어지는 것이 타당하다.
- 미국 ABI사에 의하면 발전용 고체산화물형 연료전지의 세계시장 규모는 2010년경 약 12,000 MW~22,000MW의 시장이 예측된다.(미국 ABI사 2001년 자료) 이 가운데 스택이 차지하는 비율은 약 35%인 35억 달러 규모이며, 스택의 약 45%를 분리판이 차지하므로 세계의 분리판 시장 규모는 15억 달러가 조금 넘게 형성될 것으로 판단된다.
- 국내의 시장 규모는 2005년 70MW, 2010년 1,500MW의 시장이 예측되며(예측 근거 : 한전 자료), kW당 1,000 달러로 가정할 경우에 국내 시스템 시장은 2010년 약 15억 달러 정도이며, 분리판 시장을 위와 같이 계산할 경우, 2010년 국내의 분리판 시장은 약 2.4억 달러가 될 것으로 예측된다.
- 상기의 시장 규모는 분산전원용 시장에 한정된 것으로써 가정용 및 자동차용 연료전지의 수요를 함께 고려하면 그 규모는 2~3배가 더 클 것으로 예상된다.
- SOFC 시스템용 연료전지 스택 모듈의 가격 측면에서 45% 이상의 비중을 차지하는 분리판의 가격을 낮추는 것은 실용화를 촉진시키는 계기가 될 수 있을 것으로 판단된다. SOFC 실용화 및 국산화 기술 개발은 중공업, 화학공업 계열 산업, 소재산업 발전 등 다른 재료 시장 형성이 가능하다.

## 다. 국내외 기술 개발 현황

### 1) 국내 기술개발 동향

- 국내에서의 고체산화물 연료전지기술은 1994년에 대체에너지기술 개발 프로그램으로 진행되어 왔으며, 각 연구소, 대학, 기업 등에서 기초기술 개발, 요소 기술 개발, 단전지 기술, 스택 기술 개발 연구가 진행되었다.
- 국내의 연구 개발은 주로 셀 제작기술에 집중되어 왔으며, 개발된 셀 면적은 100cm<sup>2</sup>, 스택은 100W 정도이며 전극, 전해질 등 요소 기술에 관한 기초기술은 확보되어 있는 상황이다.
- 국내의 단전지 성능(0.85V, 300mA/cm<sup>2</sup>)은 선진국과 유사하나 장시간 운전 시 성능감소가 많고 대면적화 기술이 부족하다. 그러나 분리판 기술 개발은 거의 이루어지지 않고 있으며, 기존의 재료를 그대로 혹은 코팅하여 사용하고 있다. 특히 셀 제작 기술이 어느 정도 확보됨에 따라 스택의 제조 시 필수적인 분리판 기술 개발의 필요성이 크게 대두되고 있는 상황이다.
- 최근인 2005년에 들어 정부의 핵심기술 개발과제와 대체에너지 과제에서 포항산업연구원(RIST)과 한국에너지기술연구원(KIER)에서 처음으로 분리판 개발을 시작하고 있으나 이에 대

한 집중적인 연구개발이 더 이루어져야 하는 상황이다. 이들 연구에서는 주로 금속 분리판을 중점적으로 개발하고 있다.

- 현재 국내 SOFC 개발을 위해서는 지금까지의 연구결과를 토대로 kW급 기술에 적용할 수 있도록 하기 위해서는 스택의 수명과 내구성에 큰 영향을 미치는 분리판 재료에 대한 개발 방향 및 목표 등을 수립하여 새로운 소재와 공정을 개발하는 것이 시급한 상황이다.
- 특히 선진국들은 SOFC 발전 기술을 비롯하여 분리판 등의 부품 제조기술을 전략적으로 보호하고 있기 때문에, 이를 고려하여 국내에서는 외국 SOFC 기술의 시장진입에 따른 대책을 빠른 시일 내에 세워야 할 것으로 판단된다.

## 2) 국외 기술 개발 동향

- 미국은 에너지성(DOE)과 전력연구소(EPRI)를 중심으로 연구개발 프로그램이 진행되고 있다. DOE는 원통형 SOFC를 개발하는 지멘스-웨스팅하우스사(Siemens-Westinghouse)의 25kW, 100kW의 성공적인 개발에 힘입어 2002년까지 2억 달러를 투자하여 연료전지/가스터빈 복합발전 시스템인 가압형 250kW, 1MW, 2MW 발전시스템을 개발하는 프로그램을 1997년부터 진행하고 있다.
- Siemens-Westinghouse사의 원통형 셀은  $\text{La}(\text{Cr},\text{Mg})\text{O}_3$ 계의 연결재와 YSZ전해질을 다공질의 공기극 재료에 코팅하는 EVD 공정을 채택하였다. 원통형 셀은 70,000시간 이상의 장기 시험을 하였으며, 100kW 모듈에서 46%의 AC효율(LHV)이 얻어졌다. 최근 EVD 공정에 의한 원통형 셀의 가격 문제를 극복하기 위하여  $\text{LaCrO}_3$ 계 재료의 플라즈마 용사코팅 기술을 개발하여  $\text{LaCrO}_3$  계의 치밀한 층을 제조하는데 성공하였다.
- 또한 상용화를 위해 100MW 생산설비를 확충, 경제성 확보를 위해 발전시스템의 가격을 kW(ac)당 1,300\$로 감소시키는 것을 목표로 하고 있다. 현재 250kW급 발전시스템의 개발을 완료한 상태이다. 미국의 경우 분리판 기술은 원통형의 경우 세라믹 또는 금속분리판, 평판형의 경우 금속 분리판을 주로 개발하고 있다.
- 일본은 NEDO가 지원하는 New Sunshine 프로그램을 다수의 기업과 연구소들이 진행하고 있다. 지금까지 주로 평판형을 많이 연구 개발하여 왔으나, 기술적인 문제점과 개발 속도 등을 감안하여 원통형 구조도 함께 개발하고 있다.
- 일본의 TOTO사는 원통형 셀을 제조하기 위하여 습식 소결공정을 개발하고 있으며, 습식공정을 사용하여 다공성의 공기극 지지체에 치밀질의  $(\text{La},\text{Ca})\text{CrO}_3$ 계 분리판을 제조하고 있다. [그림. 6.]는 TOTO사가 제작한 셀의 성능 향상을 연도별로 나타낸 것으로, 이들 습식 공정 기술의 핵심은 YSZ와 LCC를 최대한 치밀하게 제조할 수 있다는 것이다.

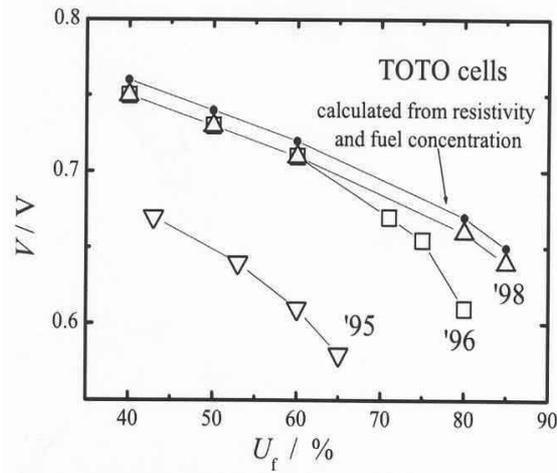


그림. 6. TOTO사의 셀 성능 향상(전극면적,  $S=450\text{cm}^2$   $R_c=350\text{m}\Omega/\text{cm}^2$  Fuel :  $\text{H}_2+11\%\text{H}_2\text{O}$ ; Oxidant: air; 1273K;  $0.3\text{A}/\text{cm}^2$ ). (출처: Fuel Cells, 1(2), 117-131 (2001))

- Ca-고용  $\text{LaCrO}_3$ 계는, 열팽창계수는 일치하지만 환원분위기에서 부피팽창이 크고, Sr-고용  $\text{LaCrO}_3$ 계는 열팽창계수와 환원분위기에서의 부피팽창 특성이 우수하지만 소결이 고온에서 이루어지는 것이 해결해야 할 과제이다.  $\text{LaCrO}_3$ 계 세라믹 분리판을 사용한 평판형 스택에서는 소량의 알칼리 회토류 원소를 첨가한  $\text{LaCrO}_3$  분리판을 제조하여 환원분위기에서 부피변화를 최소화하고, 열팽창 계수를 일치시키기 위하여 YSZ 전해질에 알루미늄을 첨가하였다. 이 방법은 Osaka Gas사의 셀 연결형 평판형 스택(cell connection-type planar stack)에서 적용하였다. 그리고 YSZ와 열팽창계수를 좀 더 일치시키고 환원 분위기에서의 부피 팽창을 방지하기 위하여 Sr-고용  $\text{LaCrO}_3$ 계 재료에 Ti과 Zr을 첨가하는 기술도 적용되었다. 세라믹 분리판을 사용한 평판형 스택에서는 열팽창계수가 유사한 세라믹 유리 밀봉재를 사용한다. Chubu Electric Power company와 MHI Kobe에서 개발한 MOLB 타입의 전지 성능이  $0.35\text{W}/\text{cm}^2$ 인 수 kW의 스택을 개발하고 있다.
- 일본(JP)에서는 또한 25 kW급 미국 기술의 도입과 자체기술의 개발을 병행하여 추진하고 있다. 자체기술 개발로는 다전자식 원통형 연료전지를 개발하고 있으며, 1995년에 미쓰비시 중공업(MHI)이 10kW를 성공적으로 개발하였다. 현재 이 시스템은 제조단가 저하를 위한 공정개선 연구를 집중적으로 진행시키고 있다. 일본은 소재기술을 바탕으로 세라믹 및 금속 분리판 기술을 연구 개발하고 있으며, 상용 소재를 활용한 분리판 기술을 개발하고 있다.
- 유럽은 독일(D)을 중심으로 영국(GB), 네덜란드(NL), 덴마크(DK), 스위스(CH) 등에서 연구개발이 진행되고 있다. 독일은 현재 10kW, 20kW의 평판형 SOFC를 제작하여 운전하고 있으며, 연료극 지지체식 평판형 구조 개발을 진행하고 있다. 또한 유럽연합(EU)의 프로그램으로 각 구성요소의 개발과 신형 구조 개발 등이 여러 나라에서 추진되고 있다. 특히 스위스의 Sulzer사에서는 Cr 합금을 적용한 스택의 상용화에 성공하였다. 그러나 이 금속 분리판은 고가이고 가공이 어렵다는 단점이 있다.
- 최근 호주(AUS)에서는 정부, 가스회사, 에너지회사, 전력회사 등을 중심으로 SOFC 전문회사인 CFCL을 설립하여, 3~5kW의 스택을 개발하고, 25kW급 스택 개발 기술을 확보한 것으로 알

려져 있다. 이에 필요한 평판형 분리판도 개발하고 있다. 이상과 같은 내용을 SOFC 설계 형태와 대표적인 기관에 따라서 [표. 5.]에 요약하여 나타내었다.

표. 5. SOFC 디자인 형태와 대표적인 기관

tubular			planar			
one cell per tube	several cells per tube	one cell per layer	several cells per layer			
ceramic interconnect	ceramic interconnect	metallic interconnect		ceramic interconnect	metallic interconnect	
		thick electrolyte	thin electrolyte		thick electrolyte	thick electrolyte
SPC (D/USA)	MHI+EPDC (Nagasaki JP)	Sulzer(CH)	FZJ(D)	SOFCo/MeDermott (USA)	CFCL (AUS), (terminated)	Rolls-Royce (GB)
Toto(JP)		ECN(NL)	ECN(NL)	MHI+CEPC (Himeji)(JP)	Sanyo(J) (terminated)	
		TMI(USA)	Haldor Topsøe (DK)	Risø (DK) (terminated)	Siemens(D) (terminated)	
		Ztek(USA)	Global Thermo-electric (CAN)	Toho Gas(JP)		
			Gernal Electric (USA)	CFCL(AUS)		
			Tokyo Gas (JP)			

(출처: F. Tietz et al., Solid State Ionics, 152-153, 373-381 (2002))