

## 테이프캐스팅을 이용한 대면적( $100\text{ cm}^2$ ) 연료극 지지체식 평판형 고체산화물 연료전지의 개발

유승호 · 송근숙 · 손희정 · 김종희 · 송락현<sup>†</sup> · 정두환 · 백동현 · 신동열

한국에너지기술연구원 신연료전지팀  
(2002년 10월 30일 접수: 2002년 12월 27일 채택)

## Development of Anode-supported Planar SOFC with Large Area by Tape Casting Method

Seung-Ho Yu, Keun-Suk Song, Hee-Jung Son, Jong-Hee Kim, Rak-Hyun Song<sup>†</sup>,  
Doo-Hwan Jung, Dong-Hyun Peck, and Dong-Ryul Shin

Advanced Fuel Cell Research Team, Korea Institute of Energy Research  
(Received October 30, 2002 : Accepted December 27, 2002)

### 초 록

본 연구에서는 중저온에서 작동되는 연료극 지지체식 평판형 연료전지를 연구하였으며, 저가의 공정인 테이프캐스팅법을 이용하여  $0.8\sim 1\text{ mm}$ 의 두께와 25, 100,  $150\text{ cm}^2$  크기의 평판형 연료극 지지체를 제작하였고, 연료극 지지체의 특성을 확인하기 위해서 기공률, 가스 투과율 그리고 전기전도도 등을 측정하였다. 12 wt.%의 결합제를 사용하여 제작된 지지체의 기공률은 45.8%이고 환원 시 53.9%로 증가함을 보였다. 연료극 지지체는  $850^\circ\text{C}$ 에서  $900\text{ S/cm}$ 의 높은 전기전도도를 나타내었으며, 1기압 하에서 공기로 측정하였을 때  $6\text{ l/min}$ 의 기체투과량을 보였다. 단전지의 제조는 테이프캐스팅법으로 제조된 연료극 지지체위에 슬러리 디핑 코팅법을 이용하여 전해질과 공기극을 순차적으로 제조하였다. YSZ의 농도를 10 wt.%와 20 wt.%로 하여 제조된 전해질의 두께는 각각  $10\text{ }\mu\text{m}$ 와  $30\text{ }\mu\text{m}$ 이었고, 공기극은 LSM-YSZ/LSM/LSCF의 다층 구조로 구성되었다.  $10\text{ }\mu\text{m}$  두께의 전해질은 매우 치밀하였고 3기압 하에서 가스 투과도는  $2.5\text{ ml/min}$ 을 나타내었다. 단전지의 성능 시험에서 20~ $30\text{ }\mu\text{m}$  두께의 전해질을 갖는 연료극 지지체식 평판형 연료전지는  $750^\circ\text{C}$ 에서  $0.6\text{ V}$ ,  $300\text{ mA/cm}^2$  성능을 보였다.

**Abstract:** For the development of low temperature anode-supported planar solid oxide fuel cell, the planar anode supports with the thickness of 0.8 to 1 mm and the area of 25, 100 and  $150\text{ cm}^2$  were fabricated by the tape casting method. The strength, porosity, gas permeability and electrical conductivity of the planar anode support were measured. The porosity of anode supports sintered at  $1400^\circ\text{C}$  and then reduced in  $\text{H}_2$  atmosphere was increased from 45.8% to 53.9%. The electrical conductivity of the anode support was  $900\text{ S/cm}$  at  $850^\circ\text{C}$  and its gas permeability was  $6\text{ l/min}$  at 1 atm in air atmosphere. The electrolyte layer and cathode layer were fabricated by slurry dip coating method and then had examined the thickness of  $10\text{ }\mu\text{m}$  and the gas permeability of  $2.5\text{ ml/min}$  at 3 atm in air atmosphere. As preliminary experiment, cathode multi-layered structure consists of LSM-YSZ/LSM/LSCF. At single cell test using the electrolyte layer with thickness of 20 to  $30\text{ }\mu\text{m}$ , we achieved  $300\text{ mA/cm}^2$  and  $0.6\text{ V}$  at  $750^\circ\text{C}$

**Key word :** Tape casting, Electrolyte, Slurry dip coating, Anode-supported planar SOFC

### 1. 서 론

고체산화물 연료전지(Solid oxide fuel cell : SOFC)는 연료 기체가 소유하고 있는 화학에너지를 전기화학반응에 의해 직접 전기에너지로 변화시키는 에너지 변환 장치이다. 일반적으로 연료전지는 전해질의 종류에 따라 알카리형(AFC)과 인산형(PAFC),

고분자형(PEMFC)연료전지와 같이 비교적 저온에서 동작되는 연료전지와  $650^\circ\text{C}$ 에서 작동되는 용융탄산염형 연료전지(MCFC)와 그 이상의 온도에서 사용되는 고체산화물 연료전지(SOFC)로 분류할 수 있다. 특히 고체산화물 연료전지는 인산형, 용융탄산염형 및 고분자형 연료전지 등 다른 연료전지에 비해 효율이 높고 공해가 적으며, 연료개질기가 필요없고 복합발전이 가능하다는 장점을 가지고 있다<sup>1)</sup>. 그러나 작동온도가 고온( $1000^\circ\text{C}$ )이어서 연결재와 전기구성요소가 고가이고 전류집전 및

<sup>†</sup>E-mail: rhsong@kier.re.kr

밀봉 등 문제점을 가지고 있다<sup>2,3)</sup>.

고체산화물 연료전지는 기하학적인 형태에 따라 원통형과 평판형 그리고 일체형으로 나눌 수 있으며, 지지체의 종류에 따라 자립막식과 전극 지지체식으로 나눌 수 있다. 특히 전극 지지체식 연료전지는 얇고 치밀한 전해질 제조를 가능하게 하여 전지의 내부저항을 감소시킬 수 있기 때문에 중저온(600~800°C)에서 작동이 가능하다는 장점이 있다. 따라서 고온작동시의 문제점을 해결하기 위한 방안으로 전해질 박막제조공정에 대한 연구와 전극의 활성을 높이기 위한 방법으로 지지체의 전기화학적 반응면적과 가스 확산층을 증가시키는 연구가 진행중이다<sup>4,5)</sup>. 특히 지지체식 평판형 연료전지는 원통형이나 일체형에 비해 높은 전력밀도와 낮은 저항요소, 제조비용이 적은 장점이 있어 소재특성을 향상시키기 위한 많은 연구가 이루어지고 있다.

현재 가장 보편화된 전해질 재료는 stabilized ZrO<sub>2</sub>, doped CeO<sub>2</sub>, LaSrGaMgO<sub>3</sub> 등이고 연료극 재료는 Ni-YSZ cermet과 Ni-SDC(Sm doped CeO<sub>2</sub>) cermet 등이며 공기극 재료는 LaSrMnO<sub>3</sub> (LSM), LaSrCoO<sub>3</sub>(LSC) 등이며, 성능향상과 작동온도를 낮추기 위한 다양한 물질들이 연구되어 지고 있다.

본 연구에서는 연료극 지지체식 평판형 고체산화물 연료전지의 제작을 위해서 저가이면서 대량생산에 용이한 테입캐스팅법을 이용하여 40 vol.% Ni-YSZ cermet을 여러 가지 크기 및 형태로 제작하였다. 전해질 층은 8 mol.% YSZ(Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-stabilized-ZrO<sub>2</sub>, MEL Co. USA)를 저가의 공정인 슬러리 디핑법을 이용하여 얇고 치밀하게 제조하였으며, 동일한 코팅법을 이용하여 LSM-YSZ/LSM/LSCF(LaSrCoFeO<sub>3</sub>)로 다층 구조의 공기극을 제조하였다. 그리고 제조된 연료극 및 전해질의 구조 및 특성을 조사하였으며, 단전지 성능평가를 하였다.

## 2. 실험 방법

### 2.1. 연료극 지지체의 제조

연료극 40 vol.% Ni-YSZ cermet을 제조하기 위해 NiO (Junsei, Japan)와 8 mol.% YSZ powder를 NiO가 40 vol.%되게 정량하여 혼합하고, 24시간 볼밀링 후 건조 분쇄하였다. 분쇄된 분말을 알루미늄 용기에 넣고 550°C에서 3시간 열처리하여 NiO-YSZ 혼합분말을 제조한 후 기공형성제로 35 vol.%의 활성탄을 균일하게 혼합한 후 건조 분쇄하였다. 제조된 분말과 결합제인 PVB(polyvinyl butyral)를 일정 비율로 혼합하고 가소제인 DBP(dibutyl phthalate)와 균산제인 Triton X-100, 분산제인 fish oil, 그리고 용매인 톨루엔과 2-propanol을 각각 정량하여 혼합하고 24시간 동안 볼 밀링을 하여 슬러리를 제조하였다. 제조된 슬러리에서 용매를 증발시켜 점도를 조절한 후 doctor Blade장치를 사용하여 캐스팅하였다. 캐스팅된 성형체는 24시간 실온에서 건조 후 150°C에서 3시간 열처리하고, 다시 1300°C에서 소결하여 지지체를 제조하였다. 건조 시 발생된 지지체의 휘어짐은 800 lb/cm<sup>2</sup>의 하중으로 1350°C에서 열처리하여 평활도를 높이는 작업을 하였다.

### 2.2. 전해질 제조

얇고 치밀한 전해질을 제조하기 위해 8 mol.% YSZ(TZ-8Y, Tosoh. Co., Japan) 분말에 캐스팅용 첨가제를 일정 비율로 혼합하고, 용매인 톨루엔과 2-propanol을 각각 정량 혼합하여 20 wt.%, 10 wt.% YSZ 슬러리를 제조하였다. 연료극 지지체 위에 제조된 슬러리를 이용하여 3회 코팅하였고, 건조 후 1400°C에서 공소결 하였다.

### 2.3. 공기극 제조

LSM((La<sub>0.85</sub>Sr<sub>0.15</sub>)<sub>0.9</sub>MnO<sub>3</sub>)과 LSCF(La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3</sub>) 분말은 고상반응법을 이용하여 합성하였고, LSM-YSZ 분말은 6 : 4(wt.%)의 비율로 혼합하여 제조하였다. 전해질과 동일한 방법으로 슬러리를 제조하여 LSM-YSZ, LSM, LSCF의 순서로 다층코팅을 하였고, 1200°C에서 3시간 소결하여 제조하였다.

### 2.4. 특성평가

제조된 지지체는 주사전자 현미경(scanning electron microscope, SEM)을 이용하여 표면 및 단면의 미세구조를 확인하였고, 4 단자법으로 전기전도도를 측정하였으며, porosimeter (Autopore IV, Micromeritics, USA)를 이용하여 지지체의 기공률을 측정하였고, 가스투과도 장치를 제작하여 공기를 사용하여 가스투과도를 조사하였다.

전해질 역시 SEM을 이용하여 전해질의 미세구조와 두께를 확인하였으며, 전해질의 치밀도를 확인하기 위해 압력의 변화에 따른 가스투과도를 조사하였다. 단위전지의 성능평가를 위해 유효면적 16 cm<sup>2</sup>를 갖는 단전지를 제작하여 온도별 성능테스트를 수행하였고, Solatron analyzer(Solatron 1260 frequency response analyser, 1287 Electrochemical Interface, USA)로 AC 임피던스법을 이용하여 2 단자법으로 온도별 저항값을 측정하였다.

## 3. 실험결과 및 고찰

### 3.1. 연료극 지지체의 제작 및 특성평가

테입캐스팅법을 이용한 지지체의 제조에서 지지체는 상태는 캐스팅 슬러리의 상태에 의해서 결정되므로 슬러리 조건의 결정이 매우 중요하다. 특히 결합제량은 성형체의 상태를 결정하는 중요 요인으로 결합제량이 적은 경우 상온 건조 시에 크랙을 유발하게 된다. 반면에 결합제량이 많은 경우 캐스팅 공정시 성형체의 형상유지가 어렵고, 건조공정시 수축이 많이 일어나 역시 크랙을 유발한다. 따라서 크랙을 유발하지 않는 적절한 조건을 찾아 테입캐스팅법을 통하여 연료극 지지체를 제작하였다. Fig. 1에 테입캐스팅법으로 제작된 25, 100, 그리고 150 cm<sup>2</sup> 크기의 지지체를 나타내었다. 지지체는 800~1000 μm 정도의 두께를 가지며 건조나 소결 시에 결합제가 제거되면서 최종적으로 약 24%로 정도의 수축을 보였다. 24%의 수축현상은 건조시 휘현상 및 크랙을 유발한다. 크랙은 성형체의 제조시 내부에 형성된 기공에 의한 것으로 생각되며, 내부에 형성된 기공은 지지체 파괴의 시작점으로서 강도에도 많은 영향을 준다. 그리고 지지체의 수축에 의한 휘현상은 지지체의 평활도에 문제를 가져온다. 평활도가 낮은 경우에 외부 압력에 의해 지지체가 쉽게 파괴되고, 전해질과 공기극 제조에 있어서 낮은 평활도는 전해질과 공기극 제조 시에 균일한 두께의 코팅 층을 제조하는데 어렵게 되고, 불균일한 전해질과 공기극은 단전지 스택 제조시 단전지에 걸리는 외부 응력 및 고온작동시 열수축 등에 의해서 단전지 파괴 등의 문제를 발생할 수도 있다. 따라서 평활도를 높이기 위한 편평화 과정을 수행하였다.

Fig. 2, 3, 4는 테입캐스팅법에 의해 제작된 지지체의 미세구조이다. Fig. 2는 각각 12wt.%와 13 wt.%의 결합제를 첨가하여 제조된 지지체의 표면 사진으로 지지체는 내부에 많은 기공을 포함하고 있으며, 특히 12 wt.%의 결합제를 첨가한 경우 좀더 많은 기공을 가지고 있는 것으로 보인다. Fig. 3과 각각 4는 12 wt.%와 13 wt.%의 결합제를 사용하여 제조된 지지체를 750°C에서 수소 분위기에서 열처리하여, 환원전 후 지지체 단

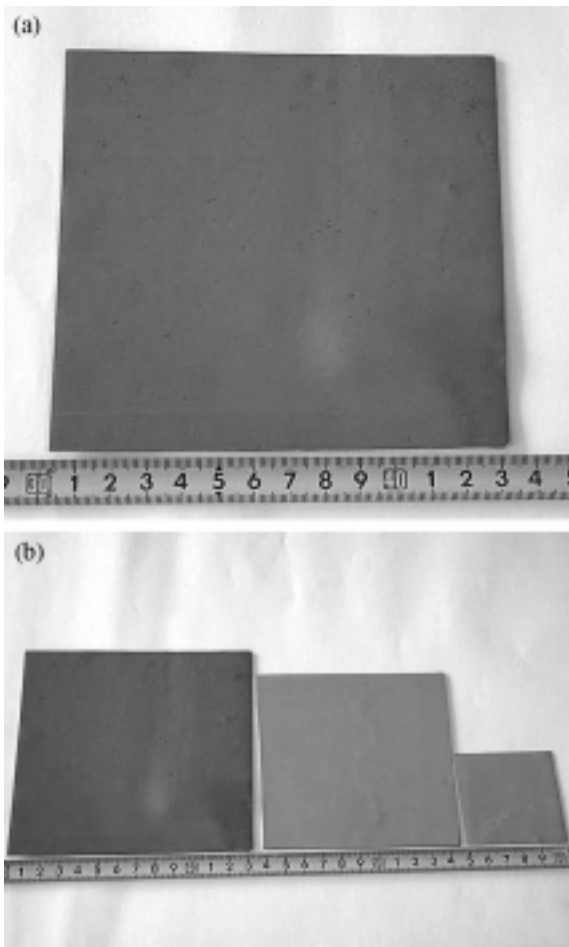


Fig. 1. 제조된 크기별 지지체 (a) 150 cm<sup>2</sup>, (b) 150 cm<sup>2</sup>, 100 cm<sup>2</sup>, 25 cm<sup>2</sup>.

면의 미세구조를 나타낸 것이다. Fig. 3에서 보여지는 것처럼 환원 후 지지체는 환원전보다 많은 기공을 형성하였고, 전체적으로 구형의 형태를 나타내었다. 지지체의 소결시 소결온도가 높을수록, 소결유지 시간이 길수록 Ni 입자가 성장하게 되는데 Ni의 입성장은 Ni간 연결성을 끊고 전극 반응 면적을 감소시키게 되어 좋은 전기전도성을 유지하지 못하므로 지지체의 Ni과 YSZ가 망목구조를 이루어 Ni의 입성장을 제어하는 것은 매우 중요하다.

12 wt.%와 13 wt.% 결합제를 사용하여 제작된 지지체를 1400°C에서 소결한 후 환원전후 기공률과 기공의 부피 및 면적을 조사하여 Table 1에 나타내었다. 전극에서 기공률은 전극 반응 면적과 가스 확산층을 증가시키는 핵심요소로 기공률이 높을수록 전지 성능이 우수해진다. 그러나 지지체에 있어서 기공률이 높아지면 기계적 강도가 약해지기 때문에 전극반응 면적을 최대한으로 하면서 우수한 기계적 강도를 가질 수 있도록 지지체 내부의 기공을 잘 조절하여야 한다. 연료극 지지체의 기공은 지지체 분말 제조 시에 첨가되는 활성탄과 결합제 등 첨가물이 건조 및 열처리 과정에서 제거되면서 형성된다. 환원전 후 기공률 변화는 NiO가 환원시 Ni로 변하면서 O이온이 빠져나가게 되면서 기공률이 증가하게 되는데 이론적으로 Ni/YSZ cermet 연료극 지지체에 있어서 Ni 함량이 40 vol.%인 경우 NiO가 Ni로 환원될 때 연료극 지지체의 체적이 변하지 않는다면 산소가

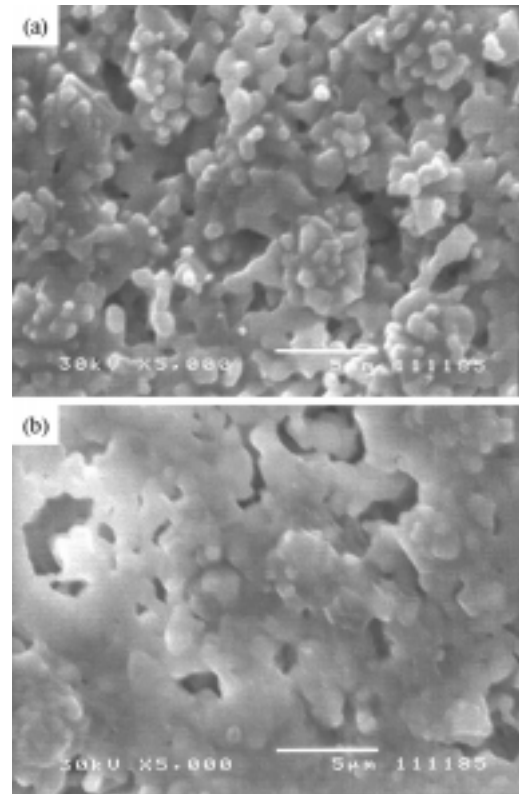


Fig. 2 결합제 첨가량에 따른 Ni/YSZ 지지체의 표면 미세구조 12 wt.%(a) 과 13%(b).

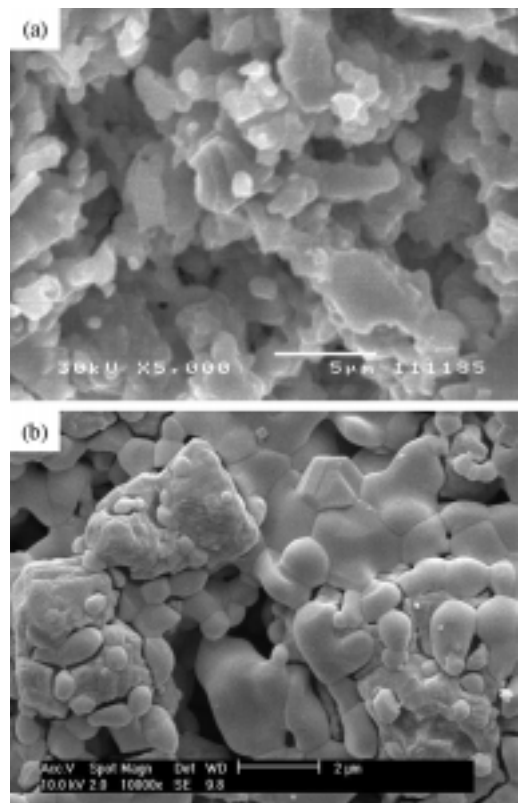


Fig. 3. 12 wt.%의 결합제가 첨가된 Ni/YSZ 기판의 환원 전 (a) 과 후 (b)의 미세구조.

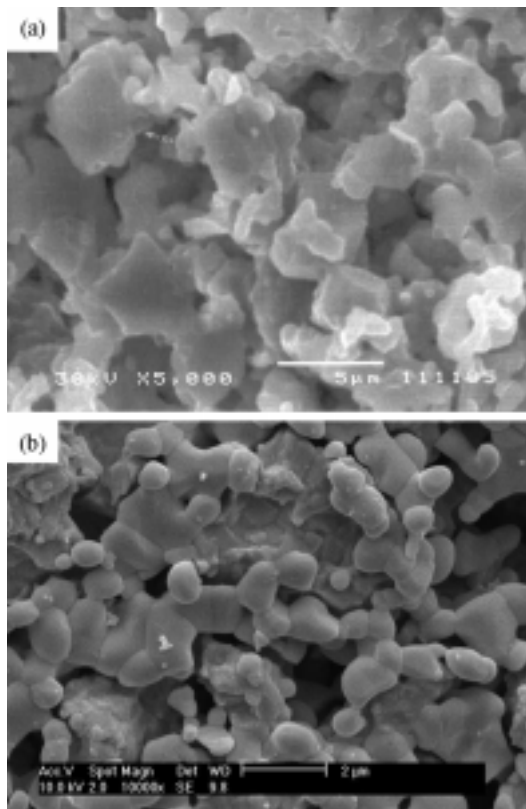


Fig. 4. 13%의 결합제가 첨가된 Ni/YSZ 기판의 환원 전 (a) 후 (b)의 미세구조.

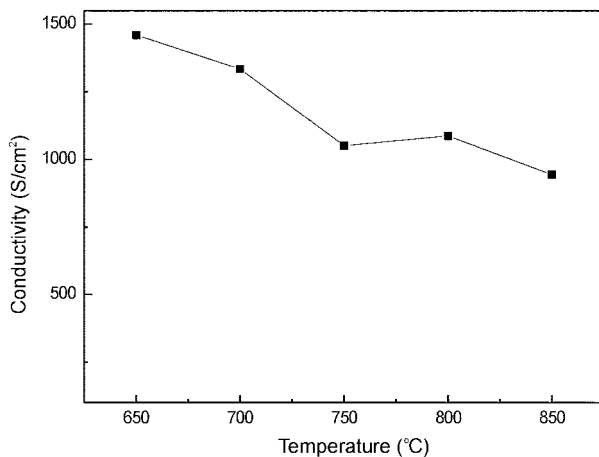


Fig. 5. 12%의 결합제가 첨가된 연료극의 전기전도도.

빠져나가면서 생기는 기공에 의해 연료극 지지체의 기공률은 약 15% 증가하게 된다. 1400°C에서 최종 소결된 연료극 지지체판의 기공률은 12 wt.% 결합제를 사용한 지지체의 경우 45.8%이고 13% 결합제를 사용한 경우의 지지체는 42.5%의 기공률을 나타내었다. 수소분위기에서 환원된 지지체는 12 wt.%인 경우 53.9%로 8.1% 증가하였고 13 wt.%의 경우 48.9%로 6.4% 증가하였다. 따라서 환원 전후 기공률에 있어서 12 wt.% 결합제를 사용한 지지체가 우수하였으며, 본 연구에서는 12 wt.%의 결합제를 첨가하여 최적의 성형체를 제조할 수 있었다.

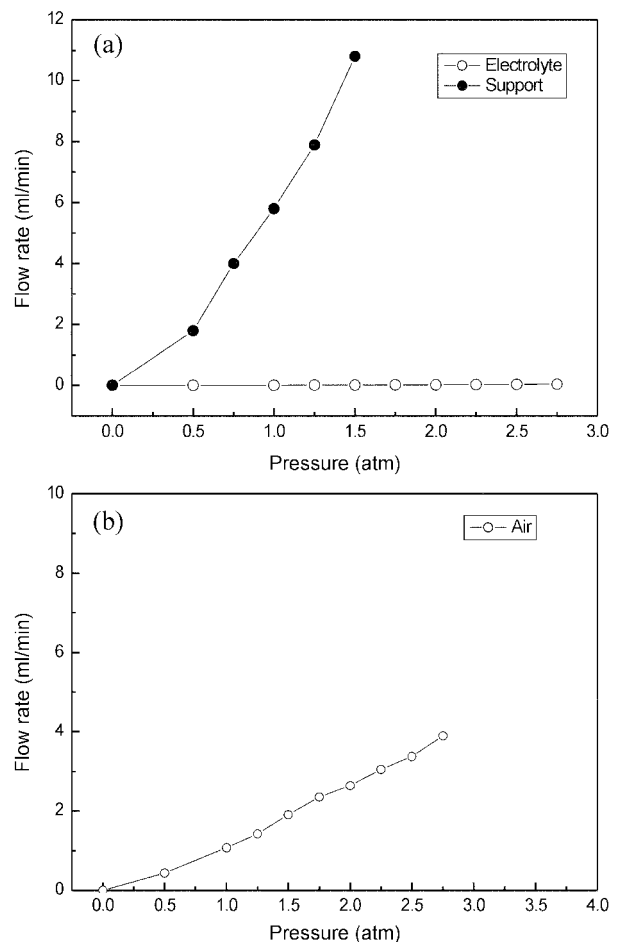


Fig. 6. 가스투과를 측정 곡선 (a) 전해질 및 지지체, (b) 10 wt.% 전해질.

지지체는 단전지의 구성에 있어서 단전지를 지지하는 역할을 하기 때문에 열충격이나 외부의 충격에 견딜 수 있는 강도를 가져야 한다. Table 2에 나타난 바와 같이 4 단자법을 이용하여 강도측정을 한 결과 29.89 MPa의 낮은 값을 나타내었는데, 이는 지지체가 약 45%의 기공률을 가진 다공질을 형성하고 있기 때문으로 생각된다. 환원 후 지지체의 강도는 18.9 MPa로 감소하였으나, 연료극 지지체는 환원 시 NiO가 금속 Ni로 변하면서 외부적인 압력에도 쉽게 파괴되지 않는 연성을 가지고 있음을 확인하였다. 실제적인 단전지의 강도를 조사하기 위해 지지체위에 전해질을 코팅한 후 측정된 결과, 지지체만을 측정하였을 때보다 56.48 MPa로 높은 결과를 나타내었고, 환원 시에도 43.45 MPa로 역시 높은 수치를 나타내었다. 이는 치밀한 전해질 층의 형성에 의해서 파괴가 시작되는 부분이 줄었기 때문이라 예상된다. 공기극을 코팅한 후의 강도는 43.45 MPa로 다소 낮았는데 이는 치밀한 전해질 보다 다공성 표면에서 파괴의 시작점이 증가하기 때문이라 생각된다.

고체산화물 연료전지의 작동조건인 650~850°C의 수소분위기에서 직류 4 point 법으로 12 wt.%의 결합제를 사용하여 제조된 연료극의 전기전도도를 측정하였다. Pt선을 이용하여 지지체의 내부에 전압단자 2개와 외부에 전류단자 2개를 구성하였고 Pt paste를 사용하여 접촉상태를 좋게 하였다. Fig. 5에 나타난 바와 같이 650°C에서 약 1500 S/cm 정도의 높은 전기전도도

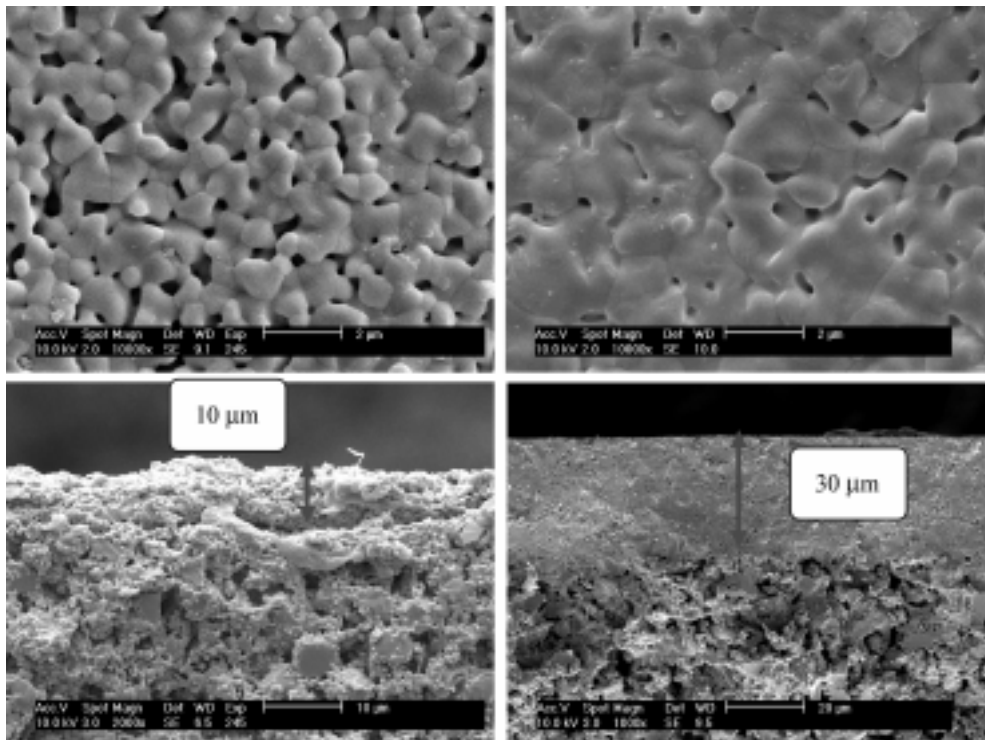


Fig. 7. 20 wt.% YSZ 슬러리가 1회 (좌), 3회 (우) 코팅된 전해질의 표면 (위)과 단면 (아래).

Table 1. 지지체의 기공 파라미터.

		Porosity(%)	Pore Area(m <sup>2</sup> /g)	Intrusion Volume(mL/g)	Average Pore Diameter(μm)
12 %	환원전	45.8	2.63	0.12	0.19
	환원후	53.9	1.65	0.16	0.38
13 %	환원전	42.5	1.82	0.12	0.26
	환원후	48.9	0.80	0.14	0.72

Table 2. 지지체의 강도비교.

	환원 전	환원 후
지지체 (평판형)	26.24 MPa (두께 : 1.17, 폭 : 2.89)	-
지지체 (원통관)	29.06 MPa (두께 : 1.24, 폭 : 1.80)	18.90 MPa (두께 : 1.67, 폭 : 2.73)
전해질코팅후 (평판형)	56.48 (두께 0.9, 폭 2.6)	68.89 (두께 0.85, 폭 2.2)
캐소드코팅후 (평판형)	43.45 (두께 0.9, 폭 2.6)	39.66 (두께 0.85, 폭 1.9)

를 보였고, 온도가 높아질수록 전기전도도는 점점 감소하여 850°C에서 900 S/cm 값을 보였는데 이는 온도 상승에 따라 연료극의 전자전도 행로로 작용하는 Ni/YSZ cermet의 저항 값이 커지기 때문이다.

### 3.2. 전해질 제조 및 특성평가

전해질은 슬러리 디핑 코팅법을 이용하여 제조하였다. Fig. 6은 연료극 지지체와 10 μm 전해질의 가스투과도를 측정한 결과이다. 측정기체는 공기를 사용하였고 이때 지지체 및 전해질의 크기는 4 cm<sup>2</sup>로 하였다. 지지체는 1기압에서 약 6 l/min의 가

스투과도를 보였고 전해질은 2기압에서 약 2.5 ml/min의 낮은 투과도를 보였다. 지지체는 연료가스가 원활하게 이동할 수 있도록 높은 가스투과도를 가져야 되지만 전해질은 가스투과도가 높아지면 연료가스와 공기가 혼합이 일어나게 되어 전지성능에 영향을 미친다. 따라서 가스투과도는 최대한 낮아야 한다. 따라서 본 실험에서 제조된 지지체 및 전해질은 우수한 가스투과성을 나타내었다.

Fig. 7은 1300°C에서 가소결된 연료극 지지체 위에 20 wt.% YSZ 슬러리로 디핑 코팅한 전해질의 표면 및 단면의 미세구조이다. 1회 코팅시의 두께는 약 10 μm 정도로 얇은 YSZ 전해질 층을 형성하였으나, 치밀하지 못함을 알 수 있다. 3회 반복 코팅 시 약 30 μm 정도의 YSZ 전해질 층을 형성하였고, 표면은 1회에 비해 두껍지만 치밀한 전해질 층을 형성하였다.

Fig. 8은 10 wt.% YSZ 슬러리를 3회 코팅한 지지체 표면과 단면 미세구조이다. 3회 코팅된 10 wt.% YSZ 전해질 층의 표면은 20 wt.% YSZ 전해질 층보다 더 치밀하였고, 두께도 10 μm 이하의 얇은 전해질 층을 이루었다. 따라서 20 wt.% 전해질에 비해 두께가 3분의 1로 감소하여 작동온도를 낮추고 성능을 향상시킬 것으로 예상된다.

Fig. 9는 건조된 지지체 소결 후, 전해질 코팅 후 그리고 공기극이 코팅된 지지체를 나타낸 그림이다.

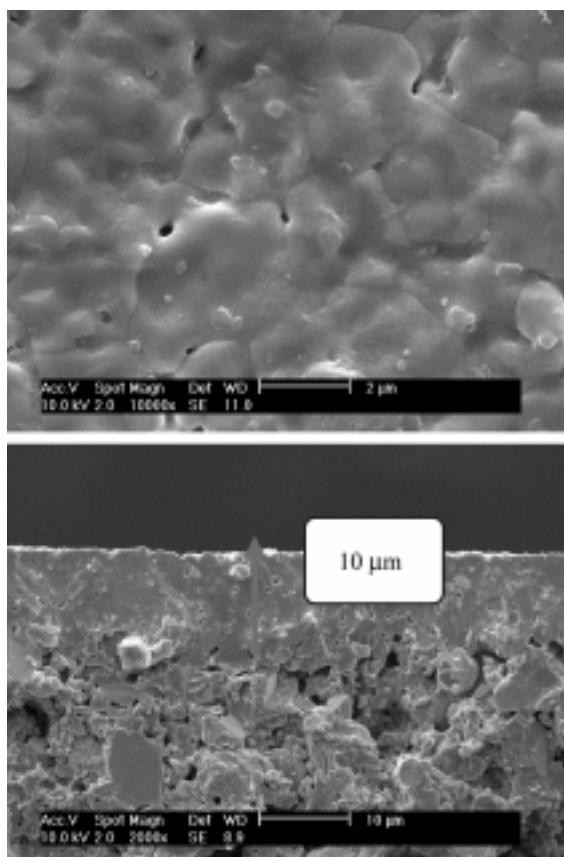


Fig. 8. 10 wt.% 슬러리가 3 회 코팅된 전해질의 표면 (상) 과 단면 (하).

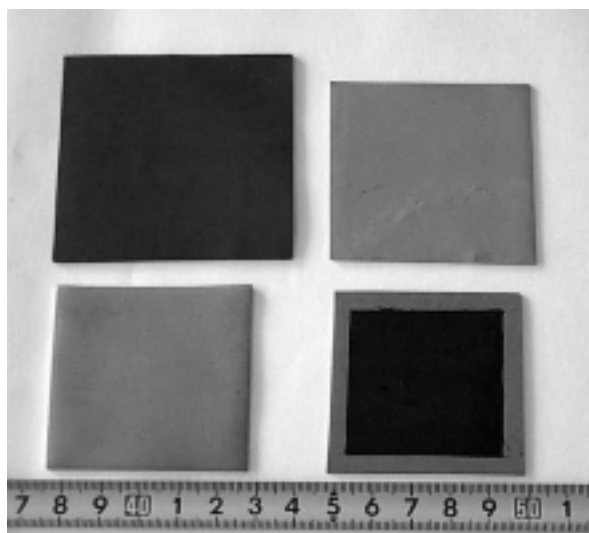


Fig. 9. 단전지 형태 건조된 지지체, 소결된 지지체, 전해질, 공기극.

### 3.3. 성능평가

단전지 매니 폴더는 인코넬을 사용하여 제작하였고 전류집전에 사용하였다. Fig. 10에서처럼 인코넬 매니폴더는 가스의 반응상태를 높이기 위하여 채널을 가지고 있으며, 연료 및 공기의 유입을 위해 네 개의 관을 가지고 있다. 매니폴더와 전극간의

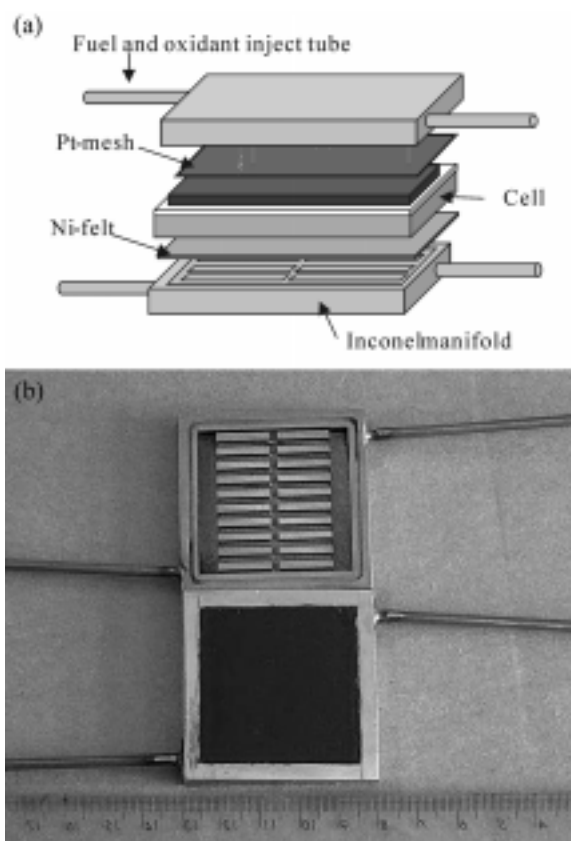


Fig. 10. 단전지 모식도 (a) 와  $5 \times 5 \text{ cm}^2$  단전지 매니폴더 (b).

접촉상태를 좋게 하여 IR drop에 의한 전압강하에 의한 전류손실을 줄이기 위해 연료극에는 Ni felt를 매니폴더와 전극 사이에 위치하게 하여 접촉상태를 높였고, 공기극에는 백금망을 동일한 형태로 사용하였다. 또한 백금 paste를 사용하여 Ni felt와 백금망의 고정과 접촉을 좋게 하였다. 인코넬 매니폴더를 전류집전체로 사용함으로써 쉽게 전류집전을 사용할 수 있었으나, 넓은 접촉면에 있어 접촉상태의 문제점을 가져 많은 IR drop을 가져올 수 있다. 그러나 본 실험에서 Pt를 전류집전체로 사용하여 비교하였을 때 비슷한 성능을 나타내었다. 그러나 인코넬을 사용하게 되면, 고온에서 산화되어 형성되는 산화피막을 형성하게 되어 재사용 시 문제점 있다.

Fig. 11는  $650\text{--}850^\circ\text{C}$ 에서 연료극 지지체식 고체산화물 연료전지의 성능특성을 나타내고 있다.  $650^\circ\text{C}$ 에서 단전지의 개회로 전압은  $1.075 \text{ V}$ 로 이론개회로 전압인  $1.105 \text{ V}$ 와 근사치를 나타내었고,  $850^\circ\text{C}$ 때  $0.6 \text{ V}$ 에서 약  $600 \text{ mA/cm}^2$ 의 전력밀도를 나타내었다. 온도가 감소함에 따라 단전지의 활성화전압이 크게 나타나므로 성능이 감소하는 현상을 볼 수 있었다. 낮은 온도에서의 성능감소는 전해질의 이온전도도의 감소에 의한 것이다. 성능시험 후 단전지의 파괴현상은 관찰되지 않았으나 반응기체의 밀봉부분에서 국부적인 과열로 인한 것으로 생각되는 지지체의 손상이 있었다.  $850^\circ\text{C}$ 에서  $0.6 \text{ V}$ 에 약  $600 \text{ mA/cm}^2$ 의 성능은 높은 수준의 성능은 아니었으나 낮은 전압에서도 전류밀도가 나타나는 경향을 보아서 단전지 조립시에 전류선 및 전극의 접촉부분에서 전압강하에 의한 전류손실이 있는 것으로 예상되며, 단전지의 접촉상태를 더 높임으로서 더 높은 전류밀도를 나타낼 수 있을 것이라 예상된다.

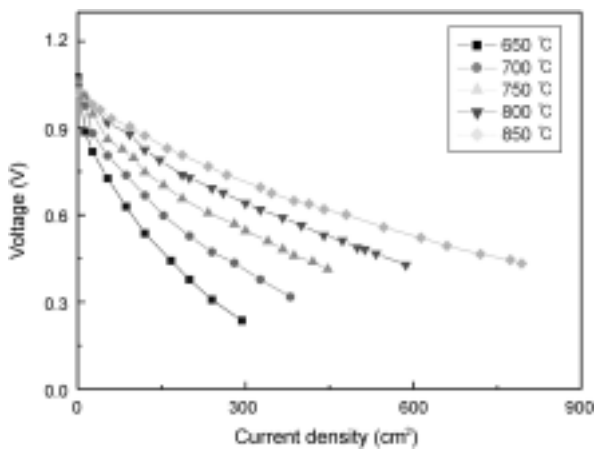


Fig. 11. 온도에 따른 단전지의 성능특성.

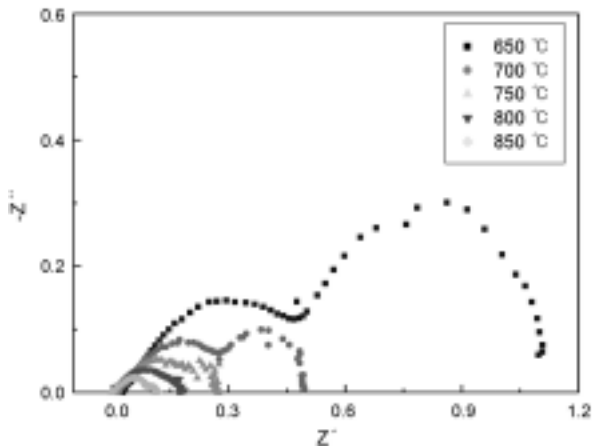


Fig. 12. 온도에 따른 단전지의 impedance 곡선.

Fig. 12는 단전지의 임피던스 측정 결과이다. 온도가 증가함에 따라 cell 분극저항( $R_p$ )이 크게 감소하였고, 셀저항 성분인  $R_s$ 는 거의 일정한 값을 나타내었다. 850°C에서 내부저항은 약  $0.1 \Omega \text{cm}^2$ 의 낮은 저항 값을 나타내었고,  $R_s$ 는 약  $0.02 \Omega \text{cm}^2$  정도를 나타내었다.

## 5. 결 론

본 연구에서 40 vol.% Ni-YSZ cermet 분말을 사용하여 테 옻캐스팅법으로 800-1000  $\mu\text{m}$  두께의 평판형 지지체를 제조하였고, 제조된 지지체는 12 wt.% 결합제를 사용하였을 때 환원전 후에 각각 45.8%, 53.9%의 기공률을 가지며, 650°C와 850°C에서 각각 약 1500 s/cm와 약 900 s/cm의 전기전도도를 나타내었다. 12 wt.% 결합제를 사용하여 만들어진 지지체의 가스투과도는 1기압에서 분당 6 l/min이었다. YSZ 분말을 이용하여 슬러리를 만들고, 슬러리 디핑 코팅법으로 슬러리의 농도를 조절하여 10  $\mu\text{m}$ , 30  $\mu\text{m}$ 의 치밀한 전해질을 제조하였다. 10 wt.% 전해질로 제조된 두께 10  $\mu\text{m}$ 의 전해질은 3기압 하에서 2.5 ml/min 정도의 투과도를 나타냈다. 다층의 공기극을 사용하여 제조된 단전지는 750°C에서 0.6 V 300 mA/cm<sup>2</sup>의 성능을 나타내었다.

## 참고문헌

1. N. Q. Minh and Takehiko, *Science and Technology of Ceramic Fuel Cell*, Elsevier Science (1995).
2. T. Iwata, *J. Electrochem. Soc.* **143**, 1521-1525 (1996).
3. T. C. Hsiao, and J. R. Selman, *Solid State Ionics*, **98**, 38-38 (1997).
4. C. Wang, W. L. Worrell, S. D. Park, J. M. Vohs, and R. J. Gorte, *J. Electrochem. Soc.* **148**, A864-A868 (2001).
5. D. Simwonis, H. Thülen, F. J. Dias, A. Naoumidis D. Staver, *J. Mater. Process. Tech.* **92-93**, 107-111 (1999).