HWAHAK KONGHAK Vol. 37, No. 5, October, 1999, pp. 734-739
(Journal of the Korean Institute of Chemical Engineers)

2 kW급 용융탄산염 연료전지 스택의 운전 특성

임희천 · 안교상 · 설진호 · 남석우*† · 임태훈* · 오인환* · 홍성안* · 문길호** · 최영태**

한전 전력연구원 발전연구실
*한국과학기술연구원
**삼성중공업

(1997년 12월 17일 접수, 1999년 5월 27일 채택)

Performance of a 2 kW-Class Molten Carbonate Fuel Cell Stack

Hee Chun Lim, Kyo Sang Ahn, Jin Ho Seol, Suk Woo Nam*†, Tae Hoon Lim*, In-Hwan Oh*, Seong-Ahn Hong*, Kil-Ho Moon and Young Tae Choi****

KEPRI-KEPCO
**KIST*
***Samsung Heavy Industry*

(Received 17 December 1997; accepted 27 May 1999)

요 약

전극 유효 면적이 1,000 cm^2인 단위전지를 20단 적층한 용융탄산염 연료전지 스택을 제작하고 성능 시험 설비를 구성하여 운전 시험을 수행하였다. 연료로 72% H_2, 18% CO_2, 10% H_2O의 혼합 가스를 사용하고, 산화제로 70% 공기, 30% CO_2의 혼합 가스를 공급하여 스택의 성능을 측정한 결과 스택의 초기 성능은 150A(150 mA/cm^2)에서 16.52 V(0.826 V/cell)로 2.5 kW의 출력을 나타내었다. 스택은 1,000시간 정도 안정한 상태로 운전되었으며, 이 기간동안 스택의 전압 감소율은 단위전지 평균 9-36 mV/1,000 h로 나타나 이전에 제작된 스택에 비해 안정성이 향상되었음을 확인하였다. 또한 스택 내 단위전지 성능 분포에 대한 표준 편차도 실험 초기 35 mV에서 1,000시간 운전 후 43 mV로 측정되어 이전 스택 결과에 비해 단위전지 성능이 보다 균일하고 안정함을 알 수 있었다. 스택은 1회의 열 싸이클에도 성능이 크게 변화되지 않아 스택의 신뢰성이 이전에 비해 향상되었다. 그러나 스택의 수명 향상을 위해서는 안정한 스택 주변 시스템의 구축과 아울러 장시간 운전에도 구조 변화가 없는 연료극과 안정한 공기극을 사용해야 할 것으로 판단되었다.

Abstract – A 2 kW-class molten carbonate fuel cell(MCFC) stack consisting of 20 cells was fabricated and its performance was evaluated in a kW-class test facility. The electrode area of each cell was 1,000 cm^2. The initial performance of the stack was close to that of previous stacks, showing 0.826 V/cell at a current density of 150 mA/cm^2(150A) and gas utilization of 40% using 72% H_2/18% CO_2/10% H_2O and 70% Air 30% CO_2 as fuel and oxidant, respectively. The initial output of the stack was 2.5 kW at 150A. The long-term performance of the stack was considerably improved by using Al-coated separators. During 1,000 hour operation, the stack showed a stable performance with a degradation rate of 9-36 mV/1,000 h/cell. The standard deviation of the voltage distribution in 20 cells was 35-43 mV. A thermal cycling of the stack did not lead to significant de-dradation of the stack performance. The life of the stack would be improved by constructing stable stack sub-system and by adopting creep-resistant anode as well as stable cathode.

Key words: Molten Carbonate Fuel Cell, Stack, Separator

1. 서 론

연료전지는 연료의 화학에너지를 직접 전기에너지로 변환시키는 발전 장치로서 기존 장치에 비하여 에너지 변환 효율이 매우 높아 화석 연료를 사용하면서 당면 문제인 CO_2 배출량을 크게 저감시킬 수 있으며, NO_x 등의 공해가 거의 발생되지 않아 무공해 자동차용 동력원으로부터 대형 화력발전 대체용 전원에 이르기까지 다양한 용도로 개발이 진행되고 있다. 여러 연료전지 중 용융탄산염 연료전지(Molten Carbonate Fuel Cell : MCFC)는 650 °C의 고온에서 작동되므로 고가의 귀금속 촉매를 사용하지 않으면서도 반응을 가속화시킬 수 있으며, 천연가스 이외에도 석탄을 연료로 사용할 수 있고, 고온의 폐열을 이용한 복합발전이 가능하여 더욱 높은 발전 효율을 기대할 수 있다[1]. 현재 용융탄산염 연료전지를 이용한 발전 시스템의 경우 대부분 대형 발전용으로 개발이 추진되어 미국은 2 MW급, 일본은 1 MW급 발전플랜트의 실증 시험 단계에 와 있으며 21세기 초 실용화를 목표로 개발에 박차를 가하고 있다[2]. 국내에서는 대체에너지 기술 개

†E-mail : swn@kist.re.kr

발 사업의 일환으로 용융탄산염 연료전지 개발이 시작되어, 현재 G7 사업에 의하여 2002년까지 MW급 스택의 기본이 되는 100 kW 용융탄산염 연료전지 시스템 개발을 목표로 연구가 진행되고 있다[3].

본 연구팀은 현재까지 스택 구성 기술 개발에 주력하여 전극 유효 면적 100 cm^2 크기의 단위전지를 10-20단 적층한 100 W급 스택[4] 및 200 W급 스택[5]과 전극 면적 625 cm^2의 단위전지를 20단 적층한 1.5 kW급 스택[6]을 제작하고 운전 변수에 따른 스택의 성능을 살펴보았다. 그 결과 스택의 초기 성능은 선진국 수준으로 재현성이 확보되어 전지구성요소 제작에 있어서 문제점은 없는 것으로 확인된 반면, 스택의 장기 운전에서는 매우 큰 성능 감소가 일어나 스택 수명 향상에 대한 대책이 요구되었다. MCFC의 실용화를 위해서는 40,000시간의 수명이 보장되어야 하며 이 기간 동안 스택의 성능 감소 속도는 단위전지 평균 10 mV/1,000 h 이하로 낮추어야 한다. 이전 스택 실험에서 장시간 운전에 따른 MCFC 스택의 성능 감소 원인은 분리판의 부식 및 전기 단락 등으로 밝혀졌으며, 이에 따라 스택의 개회로 전압이 감소하여 스택의 성능이 감소되는 것으로 밝혀졌다[6]. 따라서 본 연구에서는 분리판에 내식성 코팅을 수행하여 사용함으로써 스택의 수명을 향상시키려고 하였으며, 이와 아울러 스택과 주변 시스템을 연계시킨 kW급 MCFC 발전 시스템을 구성하여 그 특성을 살펴보았다.

2. 실 험

2-1. 스택 구성

본 실험에서는 Table 1에 나타난 바와 같이 전극 유효 면적 1,000 cm^2인 단위전지를 20단 적층한 2 kW급 스택을 구성하여 실험을 수행하였다. 스택을 제작할 때 전극, 전해질 매트릭스 및 분리판의 적층 과정을 Fig. 1에 나타내었다. 단위전지의 적층은 분리판에 Ni 집전판 및 연료극(anode)을 장착한 후, 그 위에 전해질 매트릭스를 놓고, 스테인리스 스틸 집전판 및 공기극(cathode)이 장착된 분리판을 설치하는 순서로 진행되었다. 스택 구성에 사용된 전지구성요소의 제조 방법과 물리적 특성은 이전 실험[6]의 경우와 거의 동일하였다. 전극은 테입 캐스팅 방법으로 제조하였으며, Ni-Cr 연료극의 경우 1,000 ℃에서 소성하여 사용하였고, NiO 공기극은 800 ℃에서 Ni 전극을 소성한 후 스택 내에서 산화가 일어나도록 하였다. 전해질 매트릭스 또한 테입 캐스팅 방법으로 제작하였으며, 소성 과정으로 거치지 않은 미소성판(green-sheet)의 형태로 스택 제작에 사용하였다. 전해질은 매트릭스 기공을 100%, 연료극 및 공기극의 기공을 각각 30 % 채우는 양을 계산하여 주입하였다.

분리판의 형태는 이전[6]과 같은 내부 분배형으로 스테인리스 스틸 316L 재질의 중간판 1장과 마스크판 2장을 레이저 용접법으로 접합하여 사용하였다. 중간판에는 에칭 가공에 의한 가스 통로(channel)를 제작하였으며, 분리판의 양 쪽에 타원형의 가스 분배구를 각각 5개씩 제작하여 연료 및 산화제가 분리판 내에서 같은 방향(co-flow)으로 흐르도록 하였다. 맨 아래 및 위 분리판은 50-60 mm 두께의 판을 사용하여 열이 균일하게 분포되도록 하였으며, 상, 하 분리판을 제외한 다른 분리판의 두께는 5.4 mm이었다. 스택 중간 부분에는 온도 측정을 위하여 두께 10-12 mm의 중간 분리판을 별도로 제작하여 열전대를 삽입하였다. 한편 이전 실험과는 달리 분리판의 wet seal 부분에는 플라즈마 용사법을 사용하여 약 40-50 μm의 알루미늄 층을 코팅하였으며, 고온에서의 열처리를 통하여 내식성 알루미늄 확산층을 형성시켜 용융탄산염에 의한 부식이 억제되도록 하였다. 완성된 스택은 전처리 과정을 거쳐 성능 실험을 실시하였다.

Table 1. Specification of 2 kW MCFC stack

Item	Specification
Output power	2kW
Area of electrode	1,000 cm^2(30 cm×33.4 cm)
Number of cells	20 cells
Gas distribution	Co-flow
Anode(porosity)	Ni+10%Cr(50-55%)
Cathode(porosity)	Lithiated NiO(70-80%)
Electrolyte	70 mol% Li_2CO_3 / 30 mol% K_2CO_3
Matrix(porosity)	$LiAlO_2$ (55-60%)

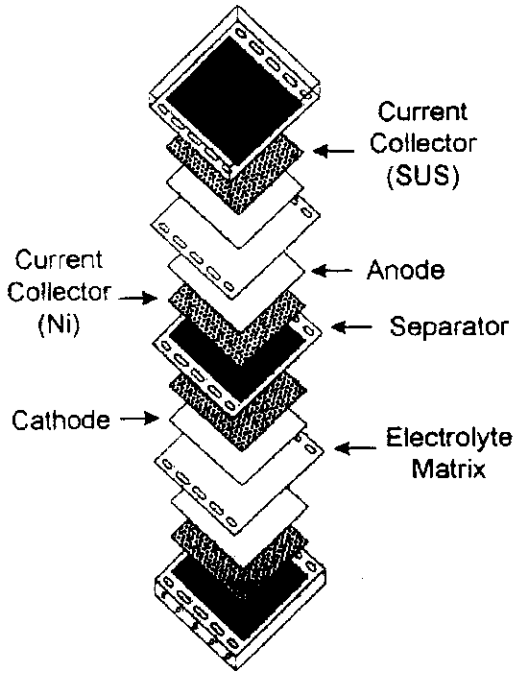

Fig. 1. Configuration of 2 kW stack.

2-2. 발전 시스템 구성

2 kW MCFC 발전 시스템은 크게 가스 공급 시스템, 스택 본체, 배출 가스 처리 시스템과 제어 및 자료 수집 시스템 등으로 구성되었으며, 이들 설비 이외에 물 및 전력을 공급하는 부대 장치와 가스 저장 설비를 설치하였다. Fig. 2에는 가스 공급 및 처리 시스템의 개략도가 도시되어 있다. 스택에 공급되는 가스는 유량측정기(mass flow meter) 및 제어 밸브를 통하여 유속이 조절되었다. 수소는 가스 실린더나 메탄 개질기로부터 공급되었으며, CO_2와 혼합된 후 가습기를 통과하여 수증기와 함께 스택의 연료극 부분으로 공급되었다. 스택의 공기극 부분에는 공기와 CO_2 혼합 가스를 공급하였다. 한편 스택으로 가스가 공급되기 전 반응 가스는 가스 예열기를 통과하여 650 ℃에서 작동되는 스택이 열충격을 받지 않도록 하였다. 스택의 아래, 위에는 가열판을 설치하여 스택의 온도를 조절하였다. 스택으로부터 배출되는 가스는 일단 냉각기를 거친 후 외부로 방출되었으며, 연료극으로부터 배출되는 가스는 물을 분리한 후 잉여 수소를 연소시켰다.

제어 및 자료 수집 시스템은 제어 패널, 컴퓨터, PLC(program logic controller) 및 주변 측정기기들로 구성되었으며, 자동 및 수동 운전이 가능하도록 설계하였다. 자동 운전 모드에서는 PLC 및 컴퓨터를 통하여 온도, 압력 및 가스 유속을 제어하였으며 이때 자료 수집 및 저장이 동시에 이루어지도록 하였다. 특히 가스의 유속은 전류밀도와 가스 이용률에 따른 유속 데이터를 PLC에 미리 입력하여 제어하였다. 각종 운전 자료는 모니터를 통하여 감시되었으며, 스택 내 온도 분포 및 단위전지 전압의 분포 상황도 나타나도록 하여 운전 상황을

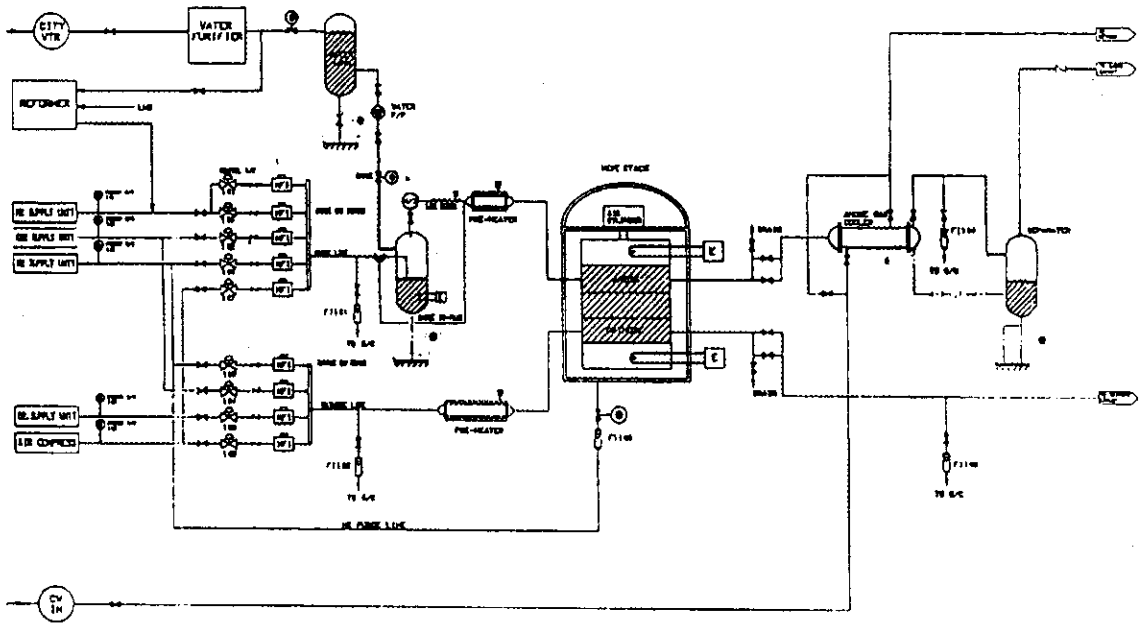

Fig. 2. Gas flow system of 2 kW stack test facility.

보다 쉽게 파악할 수 있도록 하였다. 시스템 운전은 기동, 정상 운전 및 정지의 3가지로 구분하였으며, 보호 동작은 경고 및 보호 조치로 나누어 운용하였고, 부분적인 문제점이 발생할 때에는 수동 운전으로 전환되도록 하였다.

2-3. 성능 측정 조건

MCFC 스택의 성능은 전류-전압 특성으로부터 파악되며 온도, 압력, 반응 가스 조성 및 이용률의 영향을 받는다. 본 연구에서는 650 °C, 1기압 기준으로 스택을 운전하였으며, 전극 면적이 이전에 비해 확대되어 분리판 내에 온도 편차가 형성되므로 온도 제어의 기준점은 맨 아래 및 위 분리판의 중앙 부분으로 설정하였다. 반응 가스는 연료로 72% H_2/18% CO_2/10% H_2O, 산화제로 70% 공기/30% CO_2의 혼합 기체를 공급하였으며 연료 및 산화제의 이용률은 전류밀도 150 mA/cm^2를 기준으로 각각 40% 및 30-40%가 되도록 유속을 조절하였다. 스택의 연속 운전은 150A(150 mA/cm^2)의 정부하 상태에서 수행하였다.

4. 결과 및 고찰

4-1. 스택의 초기 성능

4-1-1. 스택의 전류-전압 특성

스택의 온도가 650 °C에 도달하여 196시간이 지난 후 스택의 전류-전압 관계를 Fig. 3에 도시하였다. 이때 연료 및 산화제의 유속은 전류밀도 150 mA/cm^2에서 가스 이용률이 40%가 되도록 일정하게 유지하였다. 스택의 개회로 전압은 21.61 V이었으며, 150A에서의 성능은 16.52 V로 2.5 kW의 출력을 나타내었다.

스택의 평균 개회로 전압은 단위전지 평균 1.081 V로서 같은 조건에서 수행된 단위전지 실험[7]에서의 개회로 전압 및 Nernst 식으로부터 구한 이론값 1.07 V/cell 보다 10 mV/cell 정도 높게 나타났다. 이는 높은 유속의 가스를 자동유량조절기로 공급할 때 발생하는 오차 또는 스택 내부 각 단위전지의 온도 분포에 의해 발생되었다고 여겨진다. 한편 전류밀도 150 mA/cm^2에서 스택 성능은 단위전지 평균 0.826 V로 같은 조건에서 수행된 1.5 kW 스택[6]의 0.831 V에 근접하여, 면적이 1,000 cm^2로 확대된 단위전지의 적층에 발생하는 여러 문제점–접촉저항, 유량 및 온도 분포 등–이 어느 정도 해결되었음을 나타낸다. 150 mA/cm^2에서의 전압 손실은 5.09 V(0.255 V/cell)로 나타났으며, 전압 손실 요인은 스택의 내부 저항이 너무 낮아 측정하지 못하여 자세한 분석이 불가능하였으나 이전 1.5 kW 스택의 0.228 V/cell과 큰 차이를 보이지 않아 내부 저항 및 전극 분극 손실도 그렇게 크지 않으리라 예상된다.

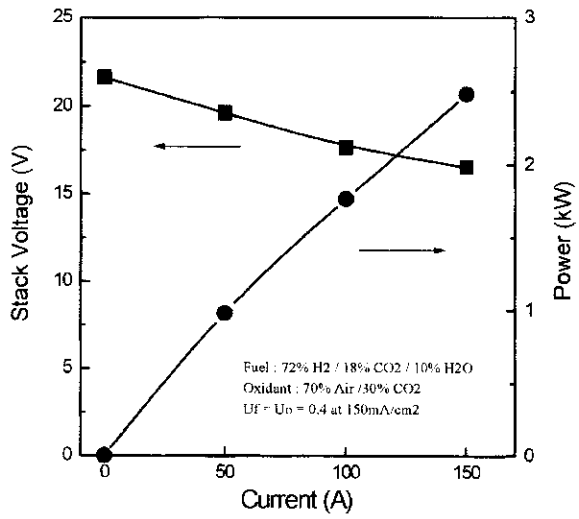

Fig. 3. Performance of a 2 kW stack.

4-1-2. 스택 내 단위전지들의 성능 분포

Fig. 4에는 단위전지 1번(위쪽 끝단)부터 20번까지 각 단위전지들의 초기 성능이 전류밀도에 따라 나타나 있다. 단위전지의 개회로 전압은 1.076-1.085 V를 나타내었으며, 상대적으로 스택의 아래 부분에 있는 단위전지의 개회로 전압이 높은 것으로 미루어 반응 가스가 공급되는 스택의 하부 단위전지의 온도가 낮음을 알 수 있다. 단위전지 성능 분포에 대한 표준 편차는 개회로 상태에서는 12 mV인 반면, 150 mA/cm^2에서는 35 mV로 전류 밀도가 증가함에 따라 성능 편차도 증가하였다. 100 mA/cm^2 이상에서는 단위전지 11번의 성능이 특히 낮게 나타났는데 그 이유는 분리판의 공기극 쪽 기체 통로의 깊이가 다른 분리판의 0.84-0.91 mm에 비하여 0.3 mm정도가 작은 0.55-0.60

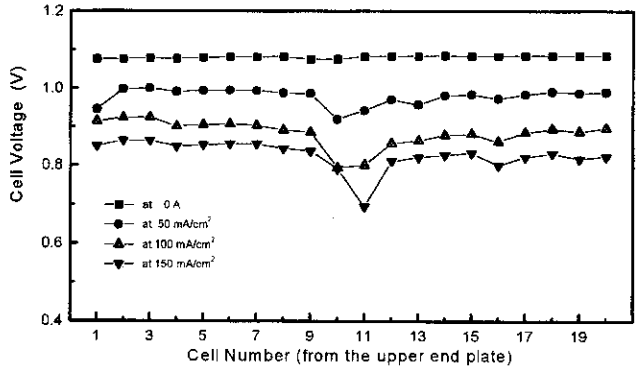

Fig. 4. Distribution of cell voltages in a 2 kW stack at 196 h cell operation.

mm로 제작되어 공기극으로의 가스 공급이 원활하지 않아 발생하는 현상으로 판단된다. 단위전지 11번을 제외한 경우에는 단위전지의 성능 분포에 대한 표준 편차가 20 mV 정도로 이전에 제작된 200 W 스택[5]에 비해서는 높았지만, 1.5 kW 스택[6]에 비해서는 비교적 균일한 분포를 나타내었다.

4-1-3. 스택 내부의 온도 분포

대형 MCFC 스택에서는 단위전지의 경우와는 달리 부하가 변화함에 따라 스택의 내부 온도가 크게 변화할 수 있다. 스택 운전 초기 개회로 상태에서 150A까지 부하를 증가시키면서 분리판 가스 유입부분의 온도를 측정하여 그 결과를 Fig. 5에 도시하였다. 스택의 온도는 부하가 증가함에 따라 상승하였으며, 가열판에 가까운 스택의 아래 및 위 분리판 보다는 스택 중간 부분의 온도가 낮게 나타났다. 스택의 중간 부분에 있는 분리판과 맨 아래 및 위 분리판 사이의 온도차는 개회로 상태에서는 41 ℃ 정도였으나 150A에서는 그 온도차가 25 ℃로 감소하였다. 부하가 증가함에 따라 온도가 증가하는 현상은 전기화학 반응에 따른 반응열의 발생에 기인한 것으로 스택이 대형화될수록 반응열의 축적으로 인한 온도 증가가 문제가 되어 효과적인 냉각 방안이 필요하다.

한편 분리판에서 가스 유입구 및 배출구 부근의 온도는 Table 2에서와 같이 입구보다는 출구 부분의 온도가 높게 나타나고 있으며, 입구와 출구의 온도차는 개회로 상태에서는 25-76 ℃인 반면 150A에서는 47-104 ℃로 그 차이가 증가하고 있고, 맨 아래, 위 분리판 보다

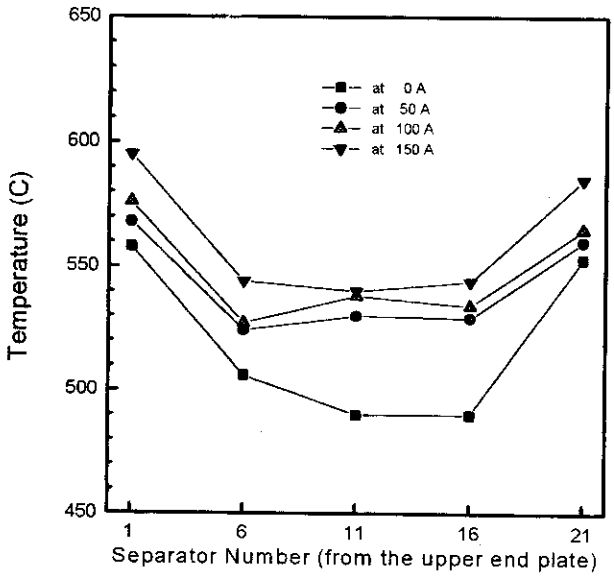

Fig. 5. Temperature distribution in a 2 kW stack.

Table 2. Temperature distribution in a 2 kW MCFC stack

Separator	# 21(upper)		# 16		# 11		# 6		# 1(lower)	
	Inlet	Qutlet	Inlet	Qutlet	Inlet	Qutlet	Inlet	Qutlet	Inlet	Qutlet
0A	558	583	506	582	490	558	490	565	553	599
50A	568	625	524	604	530	587	529	590	560	612
100A	576	648	527	645	538	633	534	621	565	639
150A	595	649	544	648	540	632	544	624	585	632

는 중간 분리판에서 입출구 온도차가 크게 나타나고 있다. 분리판 가스 배출구 부분의 온도는 전류밀도가 증가하면 전기화학 반응에 의하여 발생된 열이 가스에 전달되어 증가한다. 그러나 분리판 내에서 온도 편차가 심하게 나는 경우에는 국부적으로 온도가 증가하여 전지구성요소의 특성이 변하게 되므로 장시간 안정한 스택 성능을 확보하기 위해서는 온도 편차를 100 ℃ 이내로 유지하도록 운전하는 것이 바람직하다.

4-2. 스택의 연속 운전 결과

2 kW MCFC 스택의 기본 특성 실험과 아울러 스택의 안정성을 검증하기 위하여 150A에서 연료이용률 40%, 공기이용률 30%인 조건으로 연속 운전 실험을 수행하였다. Fig. 6에는 1,000시간까지 스택의 성능 변화가 도시되어 있다. 스택은 150A에서 운전을 시작한 후 약 300시간이 경과될 때까지는 성능이 점차로 향상되었으나 이후부터는 성능이 약간씩 감소되는 경향을 나타내었다. 그러나 스택은 730시간 부근에서의 열 싸이클(thermal cycle)에도 큰 성능 감소 없이 1,000시간까지는 비교적 안정적인 성능을 보여주었다. 1,000시간 경과할 때까지 스택의 성능 감소율은 운전 초기 시점을 기준으로 하면 단위전지 평균 9 mV/1,000 h로 나타났으나, 성능이 어느 정도 높아진 196시간을 기준으로 하면 36 mV/1,000 h로 나타나 선진국에서 목표로 하는 10 mV/1,000 h에 비해서는 아직 높다.

Fig. 7에는 196시간 및 1,000시간 운전에서 단위전지의 성능 분포가 도시되어 있다. 스택의 성능 저하는 대부분 11번 단위전지에서 발생하였으며, 11번을 제외한 단위전지의 평균 성능 감소율은 196시간에서 1,000시간까지 23 mV/1,000 h로 나타났다. 단위전지 성능에 대한 표준 편차는 196시간의 35 mV에서 약 43 mV로 증가하였다. 그러나 이러한 편차의 증가 역시 대부분 11번 단위전지의 성능 저하에 기인하고 있으며 11번 단위전지를 제외하는 경우 표준 편차가 28 mV로 상대적으로 균일한 성능 분포를 보여주었다.

이전에 실험한 200 W[5] 및 1.5 kW[6] 스택과 비교해 볼 때 본 실험에서 제작한 스택은 Fig. 8에서와 같이 수명이 보다 향상되었음을 알 수 있다. 이전에 실험한 스택의 경우에는 개회로 전압의 감소가 성능 저하의 주 요인이었으나 본 연구에서 제작한 스택은 Fig. 6에서와 같이 1,000시간의 운전 기간동안 개회로 전압의 감소 거의 일어

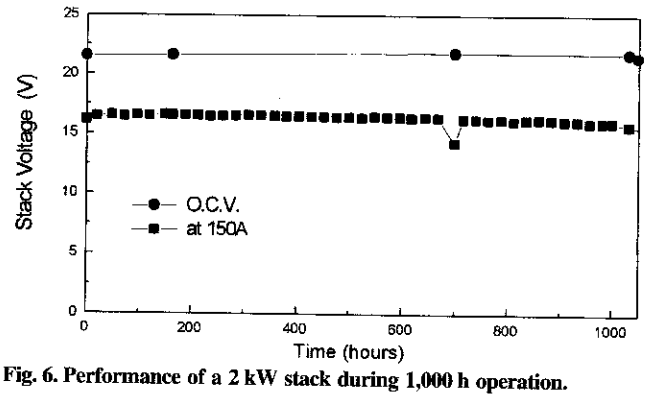

Fig. 6. Performance of a 2 kW stack during 1,000 h operation.

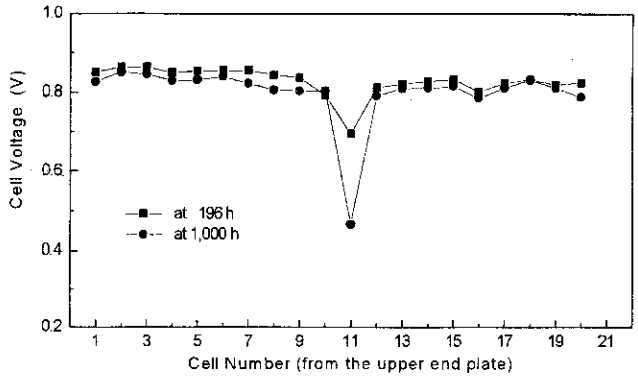

Fig. 7. Distribution of cell voltages in a 2 kW stack at 196 h and 1,000 h operation.

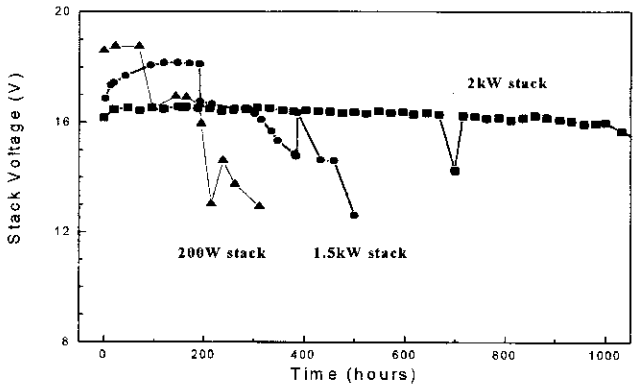

Fig. 8. Performance of 20-cell stacks at 150 mA/cm^2.

나지 않았다. 이전에 사용한 분리판에는 내식성 알루미늄 확산층이 제작되지 않았음을 고려할 때, 본 연구에서는 분리판에 형성된 알루미늄 확산층이 wet seal 부위의 부식을 억제하여 개회로 전압의 감소가 거의 없었으며 이에 따라 스택 성능도 안정하게 나타났다고 판단된다.

그러나 1,000시간 이후의 운전에서는 CO_2의 공급 중단 및 수증기의 과량 공급 등의 사고가 일어나 스택 성능이 크게 감소되었으며, 이후 100A 및 50A에서 운전을 계속하다가 3,250시간 후 스택을 해체하였다.

4-3. 열 싸이클에 따른 스택의 성능 변화

730시간의 연속 운전을 수행하였을 때 일부 시스템의 이상으로 개회로 상태에서 스택의 온도가 40 °C까지 내려가는 사고가 발생하였다. 따라서 다시 운전 온도인 650 °C에 도달하도록 스택을 가열한 후 급속하게 150A의 부하를 걸어 정상 상태에 도달할 때까지 성능 및 온도 분포의 변화를 관찰하였다. 실험 전후 스택 내 단위전지의 성능 변화 및 온도 분포 변화를 측정하여 Fig. 9 및 Fig. 10에 도시하였다. 150 A의 부하를 가한 후 스택의 전압 및 온도 분포가 정상 상태에 이르기까지는 약 9시간 정도가 소요되었다. 정상 상태에서 스택 내 단위전지의 전압 분포는 Fig. 9에서와 같이 열 싸이클 이전의 상태와 크게 달라지지 않았으며, 개회로 전압도 실험 이전과 비슷하여 1회의 열 싸이클에 본 스택이 안정함을 확인하였다. 단위전지의 전압 변화율을 살펴보면 정상 상태에 도달할 때까지 약 46-257 mV 정도 성능이 변화하며, 스택의 아래 및 위에 있는 단위전지 보다는 중간 부분 단위전지의 전압 변화가 크게 나타나고 있다. 이와 같은 현상은 스택의 온도가 정상 상태로 회복되는 속도가 스택의 중심부보다는 가열판에 가까운 스택의 아래 및 위 부분에서 빠르기 때문으로 생각되며,

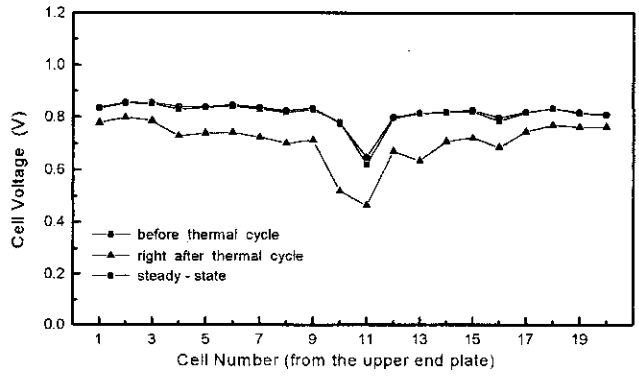

Fig. 9. Variation of cell voltages at 150A before and after the thermal cycling of the stack.

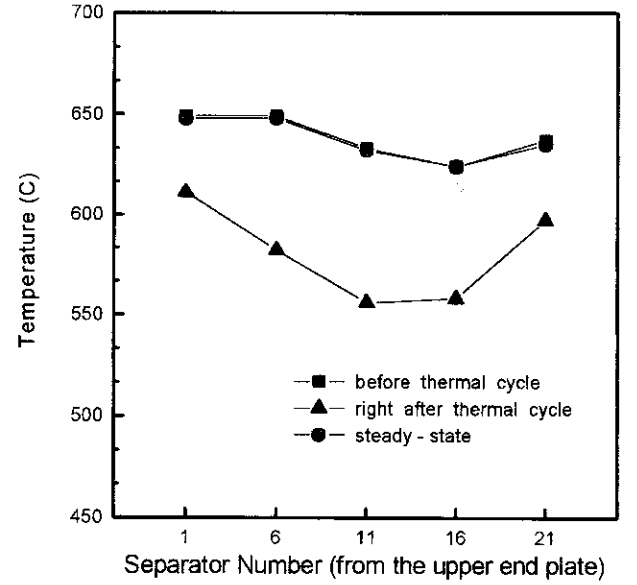

Fig. 10. Variation of cell temperatures before and after the thermal cycling of the stack.

실제로 Fig. 10에서와 같이 정상 상태에 도달하는 과정에서 중간 분리판의 온도 변화가 크게 나타나고 있음을 확인할 수 있다. 대형 MCFC 스택의 운전에서는 부하 변동에 따라 온도 분포가 크게 변하지 않도록 안정한 운전 조건을 설정할 필요가 있으며, 스택 제작에 있어서도 스택 내부의 온도 구배를 최소화 할 수 있도록 분리판의 구조 변경, 열전도 능력의 향상 등에 대한 연구가 필요하다.

4-4. 스택 장수명화를 위한 대책

이상에서 언급한 바와 같이 본 연구에서 제작한 스택은 1,000시간의 운전에 안정한 성능을 나타내었으며, 이는 분리판에 알루미늄 확산층을 형성시켜 사용함으로써 분리판 wet seal 부분의 부식이 억제되었기 때문으로 판단된다. 그러나 실험 후 스택을 해체하였을 때 분리판의 가스 공급 및 배출구 부근에서는 일부 부식이 진행되었거나 알루미늄 코팅층이 박리되는 현상이 발견되어 스택의 수명 향상을 위해서는 보다 치밀한 코팅층을 형성하는 기술이 개발되어야 할 것으로 생각된다.

분리판의 부식 이외에도 MCFC의 수명에 영향을 미치는 요인은 전극의 크립(creep) 및 소결에 의한 기공 구조 변형, 전해질 손실, NiO 공기극의 용해 및 이에 따른 매트릭스 내 Ni 침적과 전기 단락 등이 있다[8]. 스택 실험 후 전극의 기공률과 전해질 조성 및 매트릭스 내 Ni 함량을 분석하여 Table 3에 정리하였다. 실험 전후 전극의 기공률

Table 3. Results from the post test analysis of components in a 2 kW stack

Cell number	2	6	14	19
Anode porosity(%)	45	46	43	45
Cathode porosity(%)	61	67	61	67
Matrix porosity(%)	58	55	-	48
Electrolyte composition(Li/K)	66/34	66/34	65/35	63/37
Ni in matrix(wt%)	5.6	5.4	4.6	4.7

변화를 보면 연료극은 실험 전 50-55%에서 실험 후에는 43-46%로 감소한 반면, 공기극은 실험 후 기공률이 56-67% 정도로 실험 전에 비하여 약간 감소하여, 장시간 운전에서 연료극의 구조에 더 큰 변화가 일어났음을 알 수 있으며[9], 향후 Ni-Al 같은 보다 소결 및 크립 저항성이 큰 연료극 재료를 사용해야 스택의 수명이 향상될 것으로 판단된다.

한편 전해질은 실험 초기 Li/K=70/30 몰 비의 탄산염을 사용하였으나 운전 중 Li가 NiO 공기극의 lithiation 및 부식에 의해 소모됨에 따라 Li/K 비율이 약간 감소한 것을 알 수 있으나, 3,000시간 이상의 운전 시간을 고려할 때 이전 실험에 비해 큰 변화는 없다고 판단되며, 이는 분리판의 wet seal 부분에 제작된 알루미늄 확산층에 의하여 부식이 억제되어 Li 소모가 이전보다 감소하였기 때문이라 여겨진다. NiO 공기극의 용해에 의해 매트릭스 내에 침적된 Ni 양은 평균 5.1 wt% 정도로 나타났으며, 이는 단위전지 운전 결과[10]와 거의 일치하나, SEM 사진으로는 매트릭스 내부에 침적된 Ni이 연료극과 공기극을 전기적으로 연결하는 전기 단락의 상태까지는 진행되지 않은 것으로 확인되었다. 그러나 장기적으로는 NiO 공기극의 용해 속도를 감소시켜야 스택 수명이 향상될 수 있으며, 이를 위하여 현재 NiO 공기극의 안정화[11,12]에 관한 연구가 수행되고 있다.

5. 결 론

(1) 전극의 유효면적이 1,000 cm^2인 단위전지를 20단 적층한 내부분배형 MCFC 스택을 제작하여 실험한 결과 초기 성능은 150 mA/cm^2(150 A)에서 16.52 V(0.826 V/cell)로 2.48 kW를 나타내어 선진국 수준의 kW급 스택 제작 기술을 확보하였다.

(2) 1,000시간의 연속 운전에서 스택의 성능 감소율은 단위전지 평균 9-36 mV/1,000h로 나타나 이전 스택 실험에 비하여 성능 감소율이 낮았으며, 단위전지 성능 분포에 대한 표준 편차도 실험 초기 35 mV에서 1,000시간 운전 후 43 mV로 분포가 크게 변하지 않았다.

(3) 1,000시간 운전에서 스택의 개회로 전압의 감소는 크지 않았으며, 이는 분리판의 wet-seal 부분에 알루미늄 확산층을 형성시킴으로써 부식이 억제되었기 때문이라 판단되었다.

(4) 스택은 1회의 열 싸이클(thermal cycle)에도 성능이 크게 달라지지 않아 전해질 매트릭스의 신뢰성이 향상되었음을 확인하였다.

(5) 향후 스택의 수명 향상을 위해서는 안정한 스택 주변 시스템의 구축과 아울러 장시간 운전에도 구조 변화가 없는 연료극 및 안정한 공기극을 사용해야 한다.

참고문헌

1. Hirschenhofer, J. H., Stauffer, D. B. and Engleman, R. P.: "Fuel Cells a Hand Book", U.S. DOE/METC(1994).
2. Baker, B. S. and Maru, H. C.: Proceedings of the 4th International Symposium on Carbonate Fuel Cell Technology, Electrochmical Society Publication Vol. 97-4, 14(1997).
3. Lim, H. C., Hong, S. A. et al.: "A Development of 2 kW-class Molten Carbonate Fuel Cell System", MOTIE Report(1996).
4. Nam, S. W., Lim, T. H., Oh, I.-H., Lee, K. S., Yoon, S. P., Hong, S.-A., Lim, H. C., Lee, C. W. and Sun, Y. K.: *HWAHAK KONGHAK*, **33**, 559(1995).
5. Nam, S. W., Lee, K. S., Lim, T. H., Oh, I.-H., Hong, S.-A., Lim, H. C. and Kang, I. J.: *HWAHAK KONGHAK*, **34**, 651(1996).
6. Nam, S. W., Hwang, J. T., Lee, K. S., Lim, T. H., Oh, I.-H., Ha, H. Y., Yoon, S. P., Hong, S.-A. and Lim, H. C.: *Energy Engg. J.*, **8**(1), 23(1999).
7. Lim, T. H., Lee, K. S., Nam, S. W., Oh, I.-H., Hong, S.-A. and Lim, H. C.: *HWAHAK KONGHAK*, **32**, 498(1994).
8. Selman, J. R.: "Research, Development and Demonstration of MCFC Systems", in Fuel Cell Systems(Blomen, L. J. M. J. and Mugerwa, M. N. eds.), Plenum Press, New York, 394(1993).
9. Oh, I.-H., Yoon, S. P., Lim, T. H., Nam, S. W., Hong, S.-A. and Lim, H. C.: *Denki Kagaku*, **64**(6), 497(1996).
10. Hong, S.-A.: "A Development of 2 kW Molten Carbonate Fuel Cell Stack", KEPRI Report, 372(1997).
11. Choi, H.-J., Lim, S.-K., Lim, T. H. and Hong, S.-A.: *J. Power Sources*, **61**, 239(1996).
12. Hong, S.-A., Nam, S. W., Oh, I.-H., Lim, T. H., Ha, H. Y., Kim, K. and Lim, H. C.: 1998 Fuel Cell Seminar Abstracts, 142(1998).