

주요내용 설명

<작성 : 연세대학교 홍종섭 교수>

논문명	Ni-based bimetallic nano-catalysts anchored on $\text{BaZr}_{0.4}\text{Ce}_{0.4}\text{Y}_{0.1}\text{Yb}_{0.1}\text{O}_3$ for internal steam reforming of methane in a low-temperature proton-conducting ceramic fuel cell
저널명	Journal of Materials Chemistry A
키워드	bimetallic alloy catalyst(이종합금 촉매), steam reforming of methane(메탄 습식 개질), proton-conducting ceramic fuel cell(양성자 전도성 세라믹 연료전지), hydrogen yield(수소 수율), carbon resistance(탄소 저항성)
DOI	10.1039/d0ta11359j
저자	홍종섭 교수(교신저자/연세대학교), 홍경표 석/박사통합과정(제1저자/연세대학교), 스테파니 나디아 수탄토(Stephanie Nadya Sutanto) 학사(제2저자/연세대학교), 이정아 석사(제3저자/연세대학교)

1. 연구의 필요성

- 청정연료(천연가스, 바이오가스)의 주성분인 메탄 연료를 직접 활용할 수 있는 양성자 전도성 세라믹 연료전지(PCFC)는 수소에너지 기술 중 높은 효율, 피독 저항성 및 다양한 연료를 사용할 수 있는 많은 장점으로 인해 차세대 연료전지로 주목받고 있다. 하지만 이러한 장점에도 불구하고 상용화를 진행하기 어려운 문제점들이 있다.
- 가장 큰 문제로, 높은 작동온도($>700\text{ }^{\circ}\text{C}$) 때문에 발생하는 열화 현상으로 성능이 급격하게 저하되며 많은 유지비용이 발생하게 된다. 따라서 세라믹 연료전지의 작동 온도를 낮추는 것이 매우 중요하다.
- 그러나 저온 작동의 경우, 탄화수소(메탄) 연료를 사용했을 때 반응성이 급격히 낮아질 뿐만 아니라, 탄화수소 연료로부터 발생하는 탄소 침착으로 인해 연료극 속 니켈(Ni) 활성 표면적이 줄어든다. 이러한 문제점들로 인해 전지에 원활한 수소 공급을 하지 못하게 되고 전력 생산성이 낮아지게 된다.

- 따라서 연료극에 있는 니켈과의 합금을 통해 저온 메탄 운전에서 발생하는 낮은 반응성을 극복하면서 탄소 저항성을 개선할 수 있는 새로운 고효율/고안정성 합금 촉매 개발 및 도입이 시급히 필요하다.

2. 연구내용

- 본 연구는 저온(350-550℃) 환경에서 연료전지 성능을 개선하기 위해 연료전지 내부의 메탄 습식 개질을 촉진하면서 수소 생산성을 향상할 합금 촉매를 합성했고, 다양한 특성 및 활성 분석을 진행했다.

- 니켈과 합금을 형성하게 됨으로써 생기는 합금 효과를 통해 메탄 습식 개질에 필요한 활성화 에너지를 낮춰 반응성을 높일 뿐만 아니라, 탄소형성을 억제하여 니켈 활성 표면적 감소를 막아 낮은 반응성 및 탄소 저항성을 개선했다.

※ 활성화 에너지 : 반응을 일으키는데 필요한 최소 에너지

※ 탄소 저항성 : 반응 중에 형성되는 탄소가 생기지 않게 억제하는 정도

- 촉매는 연료극을 모사하기 위해 BZCYYb 지지체와 8wt%의 니켈 촉매(8Ni)를 합성했으며, 합금효과를 보기 위해 동일한 지지체에서 니켈과 후보군 물질 M(M: Co, Cu, Rh)을 3:1 무게비로 합금 촉매(6Ni2M)를 합성했다.

※ 개질 : 열이나 촉매 작용에 의하여 탄화수소의 구조를 다른 형태로 변화시키는 일

※ 연료극 : 연료전지를 구성하고 있는 전극이며 연료를 소모하는 곳

- 다양한 특성분석을 통해 모든 촉매가 일관된 구조적 특성을 가지고 합금이 형성된 것을 확인했으며, 촉매활성 평가는 온도, 증기 대 탄소 비, 가스 유량 변화 등의 다양한 조건에서 진행했다.

- 합성된 촉매 중 6Ni2Rh은 촉매활성 평가에 대한 모든 작동 조건에서 단일 촉매(8Ni) 및 합금 촉매(6Ni2M) 가운데 가장 높은 활성 및 수소 생산성을 가졌으며, 고탄소 환경의 악조건에도 불구하고 탄소 저항성과 장기간 높은 활성을 유지하는 장기 안정성을 보였다.

3. 연구성과

- 연료극에 Rh과 합금을 시킴으로써 원활한 수소 공급과 탄소 저항성을 향상시켜 다양한 작동 조건에서도 고효율 및 고안정성 성능을 낼 수 있는 연료극 촉매를 확보했다.
- 추후 연료전지 스택을 구축, 저온 내부 개질 스택 운전을 하게 되면 연료전지 시스템 관점에서 사용되는 에너지뿐만 아니라 복잡성 및 유지 보수 등 전체적인 비용을 줄일 수 있다.
- 향후 연료전지 스택에 본 연구의 성과물을 적용한 장기간 운영평가를 진행할 예정이다. 이를 통해 세라믹 연료전지 상용화를 앞당기고, 수소 사회로의 진입을 돕는데 기여할 것으로 기대된다.

그림 설명

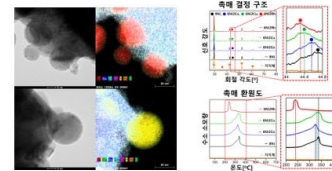
촉매 소재 선별 및 합성

- 연료극 구조를 모사한 니켈/지지체 촉매 합성
- 연료극 개선을 위한 후보군 물질 선정 및 합금 형성



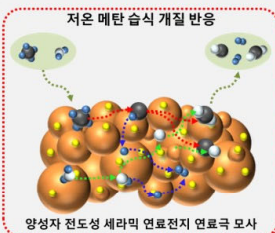
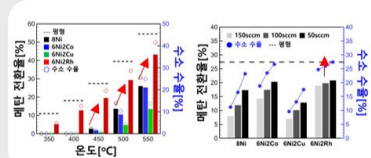
촉매 표면 특성 분석

- 표면 정보(결정 구조, 비표면적, 입자 크기 등)
- 합금 형성을 통한 환원도 개선



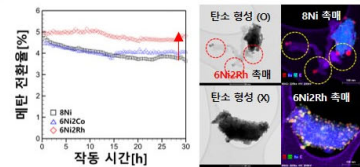
촉매 활성 평가

- 다양한 조건에서의 활성 평가
- 합금 촉매(Ni-Rh)를 통한 활성 향상



촉매 장기 안정성 평가

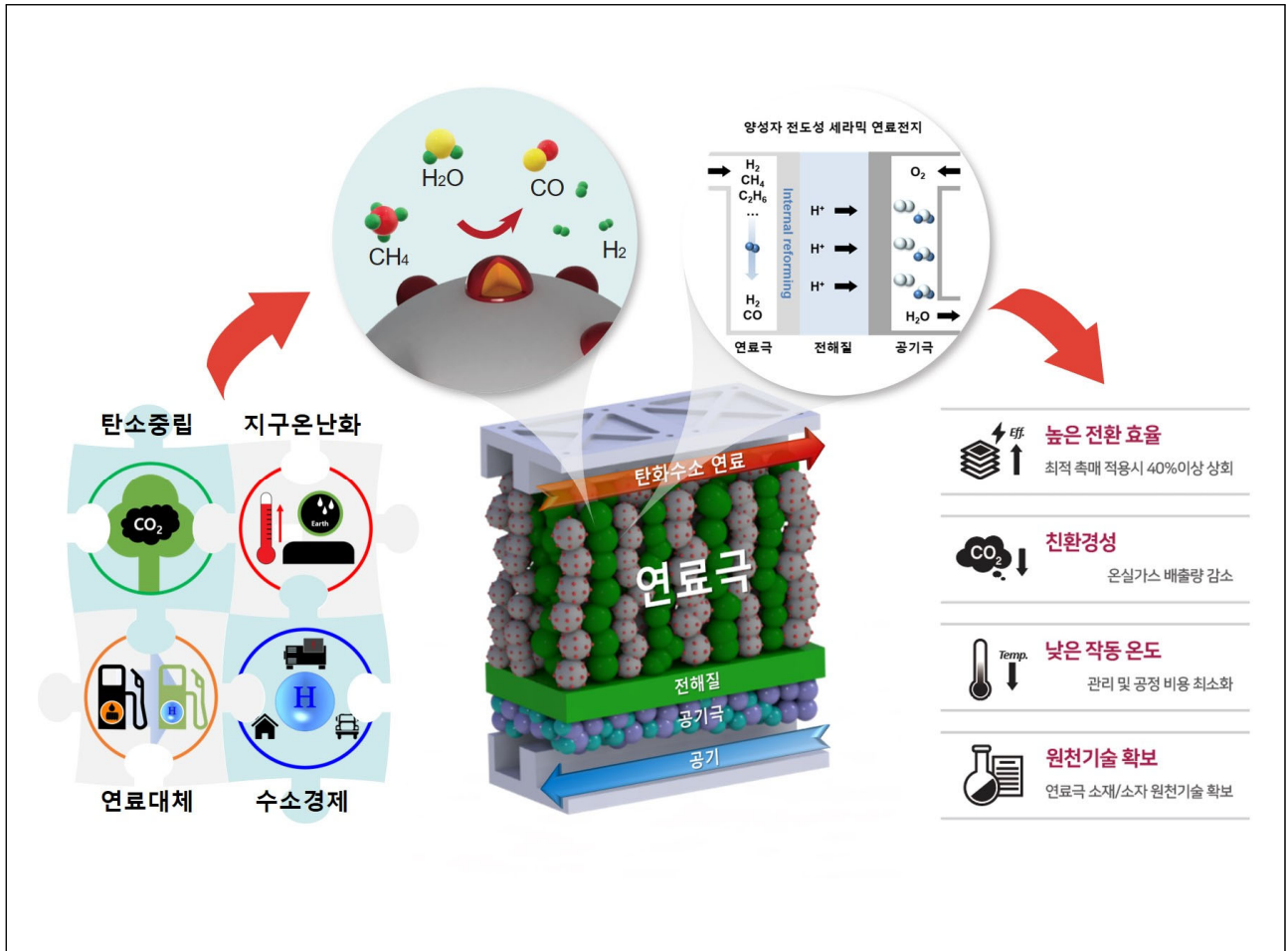
- 합금 효과에 따른 탄소 저항성 향상
- 장기 안정성 확보



(그림 1) 양성자 전도성 세라믹 연료전지의 연료극 개선 모식도

저온에서 탄화수소 연료를 사용하는 연료전지는 연료극에서 비활성화 및 탄소 침착 등의 문제점이 있다. 연료극을 모사하는 니켈/지지체 촉매와 니켈 기반의 합금 촉매를 합성하여 다양한 특성 분석 및 활성도 평가를 진행했다. 니켈-로듐 합금 촉매는 다양한 조건에서도 높은 활성 및 장기 안정성을 보이는 것을 통해 문제점을 개선할 촉매로 확인되었다.

그림설명 및 그림제공 : 연세대학교 홍종섭 교수



(그림 2) 본 연구를 적용했을 때 나타나는 기대 효과

메탄 연료를 직접 활용할 수 있는 세라믹 연료전지의 작동온도를 낮출 수 있도록 연료극을 개질한 이번 연구결과는 탄소중립, 지구온난화 해결, 수소경제 등의 흐름을 선도할 수 있는 기초자료의 하나가 될 것으로 기대된다.

그림설명 및 그림제공 : 연세대학교 홍중섭 교수

연구 이야기

<작성 : 연세대학교 홍종섭 교수>

□ 연구를 시작한 계기나 배경은?

연료전지 상용화에 앞서 시스템 관점에서 전체 기술 현황을 분석했을 때, 높은 작동 온도를 유지하고 외부 개질기를 사용하여 연료인 수소를 공급하는데 많은 에너지와 비용이 들게 됩니다. 이러한 문제점들을 개선하기 위해 작동 온도를 낮추고 직접 메탄 연료를 주입하게 되면, 성능 감소 및 탄소 피독으로 인해 불안정한 현상이 추가로 발생하게 됩니다. 따라서, 작동 온도를 낮추면서 메탄 연료를 주입해도 높은 성능과 장기 안정성을 담보할 수 있는 기술을 확보하기 위해 이종합금 촉매에 관해 연구하게 되었습니다.

□ 연구 전개 과정에 대한 소개

양성자 전도성 세라믹 연료전지의 문제점을 극복할 수 있는 촉매를 연구하고자 연료극 물질인 니켈 단일 촉매와 니켈 기반의 이종합금 촉매를 합성했습니다. 여러 가지 특성 분석을 통해 촉매 비표면적, 입자 크기, 합금 형성 등의 일관된 표면 구조를 갖는 것을 확인했습니다. 연료전지 구동 조건과 동일한 반응 조건에서, 상기와 같이 준비된 촉매를 저온 메탄 습식 개질 반응에 적용하여 가장 높은 활성과 안정성을 가지며 다량의 수소를 생산하는 최적의 촉매를 확보했습니다.

□ 연구하면서 어려웠던 점이나 장애 요소는 무엇인지? 어떻게 극복하였는지?

기존에 촉매 합성 과정에서 많이 활용하는 석출(precipitation) 방법을 사용하게 되면 연료극을 모사하는 촉매의 지지체 물질이 물에 취약하여 원하지 않는 이차상이 쉽게 발생하게 됩니다. 이 부분을 해결하기 위해 용매를 물에서 에탄올로 바꿨으며, 습식 함침법(wet impregnation)을 통해 이차 상을 최소화했습니다.

□ 이번 성과, 무엇이 다른가?

고온 세라믹 연료전지의 연구 동향은 연료극, 전해질, 공기극의 물질들을 새롭게 개발하여 수소 운전에서 성능을 향상하는 연구입니다. 하지만, 본 연구는 상용화에 근접하기 위해 연료극에 합금 촉매를 형성시킴으로써 낮은 작동 온도에서 직접 메탄 연료를 사용할 수 있으며, 이를 통해 원활한 수소를 공급하고 안정성을 담보할 수 있는 이종합금 촉매 연구를 진행했습니다. 상용화의 가장 큰 난제인 성능 및 신뢰성을 모두 담보할 수 있는 방법론을 제안하였습니다.

□ 실용화된다면 어떻게 활용될 수 있나? 실용화를 위한 과제는?

저온에서 메탄 연료를 사용하며 연료전지 스택을 구동하게 된다면 합금 촉매를 통해 열화현상 없이 장기 운전이 가능하며, 외부 개질기의 필요성이 사라지게 됩니다. 이를 통해 연료전지를 구동하는 데 필요한 전체적인 에너지 및 유지 보수 비용이 줄어드는 경제적인 효과를 볼 수 있습니다. 실용화를 위해 단일 셀 실험뿐만 아니라 스택 레벨에서의 성능 및 장기 운전 평가가 필요합니다.

□ 꼭 이루고 싶은 목표나 후속 연구계획은?

양성자 전도성 연료전지는 다양한 연료를 사용할 수 있습니다. 이러한 장점을 통해 온실가스인 메탄과 이산화탄소를 연료로 사용하여 온실가스를 줄이면서 연료전지 구동을 할 수 있는 촉매 연구를 해볼 예정입니다.

연구자 소개

<홍종섭, 교신저자>



1. 인적사항

- 소 속 : 연세대학교 기계공학과
- 전 화 : 02-2123-4465

2. 학력

- 2009 ~ 2013 MIT대학교 박사 (기계공학)
- 2007 ~ 2009 MIT대학교 석사 (기계공학)
- 2003 ~ 2007 서울대학교 학사 (기계공학)

3. 경력사항

- 2020 ~ 현재 연세대학교 기계공학과 부교수
- 2017 ~ 2020 연세대학교 기계공학과 조교수
- 2015 ~ 2017 한국과학기술연구원 선임연구원
- 2013 ~ 2015 한국과학기술연구원 연구원
- 2017 한국생산제조학회 젊은 과학기술자상 수상.
- 2005 Fulbright-GE Foundation Scholar-Leaders 수상

4. 전문분야 정보

- 기계공학 (다물리 현상을 기반한 모델/시스템 개발 및 촉매 반응 연구)

5. 연구지원 정보

- 2019 ~ 현재 과학기술정보통신부·한국연구재단 기초연구사업(신진연구)

<홍경표, 제1저자>



1. 인적사항

- 소 속 : 연세대학교 기계공학과
- 전 화 : 02-2123-7280

2. 학력

- 2018 ~ 현재 연세대학교 기계공학과 석/박사 통합과정 (기계공학)
- 2012 ~ 2017 강원대학교 학사 (기계공학)

3. 경력사항

- 2019 한국세라믹학회 포스터 발표 수상

4. 전문분야 정보

- 기계공학 (연료전지 촉매 반응 메커니즘 연구)