

소형 연료전지용 미세채널 개질기 개발

Development of a Microchannel Fuel Processor for Portable Fuel Cell System

임성대, 서동주*, 박구곤, 윤영기, 이원용, 김창수
한국에너지기술연구원 연료전지연구센터, *전환공정연구센터

1. 서론

고분자 연료전지는 높은 발전효율 및 출력밀도로 인하여 휴대용 전원으로서도 매력을 지니며 기존의 이차전지에 경쟁력을 지니는 기술로써 많은 연구가 수행 중이다. 특히, 휴대용 연료전지 시스템으로 그 가능성이 모색되어온 기존의 직접메탄올 연료전지에 비하여 콤팩트하면서도 높은 출력을 구현할 수 있는 장점으로 그 관심이 높아지고 있다. 하지만, 고분자 연료전지를 휴대용 전원으로 적용하기 위해서는 연료전지 자체의 소형화보다 수소 공급 장치를 얼마나 높은 에너지 밀도의 콤팩트한 시스템으로 구현할 수 있는지에 더 큰 비중이 주어진다.

소형 고분자 연료전지의 수소공급 장치로는 금속수소화물 혹은 화학적 수소화물 등이 많이 연구되어 왔다. 금속수소화물의 경우 상용화직전의 기술적 단계에도 불구하고 상대적으로 무거워 휴대용 전원에는 적용이 제한적일 수밖에 없으며, 화학적 수소화물의 경우에는 시스템이 간단하고 가벼운 장점을 지니지만 에너지 밀도가 비교적 낮은 단점을 지닌다. 이에 비하여 메탄올을 연료로 사용하는 소형 개질기는 높은 에너지 밀도를 지니는 콤팩트한 시스템의 구현이 가능한 매우 이상적인 시스템임에도 불구하고 하나의 화학플랜트에 해당하는 개질 시스템을 소형화해야 하는 문제로 인하여 여전히 해결해야 할 기술적 과제들을 많이 포함하고 있다.

메탄올은 이론적으로 높은 에너지 밀도를 가지며 상온에서 액상이므로 연료저장 카트리지의 취급 및 교환이 간편하며 비교적 저온에서 개질반응이 일어나는 장점으로 인하여 마이크로 채널 반응기를 이용한 소형 수소 발생기의 연료로서 각광을 받고 있다 [1-3].

소형 개질기의 구현을 위해서는 단위 체적에 대해 매우 큰 면적의 구조를 만들 수 있는 마이크로채널 반응기가 가장 이상적이다. 마이크로채널 반응기는 열전달 및 물질전달이 용이하여 촉매화학반응에 적합한 구조를 지니며 마이크로채널 내부의 유체는 층상흐름을 보이므로 반응기내 체류시간 분포가 한정되어 신속한 응답특성을 보임으로써 소형 연료전지에 수소를 공급하기 위한 소형 개질반응기로서 매우 이상적이다.

이러한 마이크로채널 개질 반응기 시스템은 액상연료의 증발을 위한 연료증발기, 수소를 생성하는 개질 반응기, 반응열과 증발열을 제공하는 촉매연소기 및 일산화탄소 제거기 등의 복잡한 시스템으로 구성된다. 본 연구팀에서는 이미 연료증발기 및 개질반응기 시스템을 설계 제작하여 그 성능 및 최적 운전 조건들에 대한 영향을 고찰한 바 있다 [4]. 이를 바탕으로

로 이번 연구에서는 메탄올 및 수소를 연료로 하는 연소기 및 이들을 통합하는 독립 가열에 의한 메탄올 개질기 통합 시스템을 구성하였으며 이들의 운전을 수행하였다. 또한, 본 연구에서는 통합 메탄올 개질 시스템에 대한 운전 변수들의 영향을 고찰하고 본 통합 시스템의 최적 설계를 위한 가이드 라인을 제시하고자 한다.

2. 실험방법

폭 $500\mu\text{m}$, 깊이 $600\mu\text{m}$ 및 길이 33mm 의 직사각형 마이크로채널을 스테인레스 박판에 가공하였다. 각 박판에는 20개의 평행 채널을 가공하였으며 유체의 고른 흐름을 위해 채널 양 끝단에 삼각형의 매니폴드를 형성하였다. 증발기는 박판의 조합만으로 구성하였고 개질 반응기는 박판상의 채널 내부를 촉매로 코팅하였다. 개질용 촉매는 ICI 사의 상용 촉매 ($\text{Cu/ZnO/Al}_2\text{O}_3$)를 사용하였다.

마이크로채널이 형성된 박판들을 적층하여 증발기와 개질 반응기를 제작하였으며, 적층된 박판들은 종판(End plate)과 나사를 이용하여 고정시켰다. 종판의 벽면에는 봉형 전기 발열체를 삽입하여 반응기 기동시 증발이나 반응에 필요한 열을 공급하였다.

촉매연소기로는 여러 형상의 유로를 지니는 채널판과 메탈폼, FeCrAlloy 재질의 금속판 등 다양한 형상과 재질의 반응기들이 시도되었다. 연소용 촉매로는 기존에 많이 사용되어 온 $\text{Pt/Al}_2\text{O}_3$ 를 적용하였으며, 촉매 제조는 전형적인 촉매제조법인 impregnation 방법에 의하여 준비되었다.

통합반응기는 증발기, 열교환기, 개질기 및 연소기로 구성되었으며, Fig.1에서와 같은 시스템 구성방법에 의하여 개발되었다. Fig.2는 본 연구에서 개발된 메탄올 개질기 통합 반응 시스템 형상을 보여준다. 통합반응기의 크기는 종판을 포함하여 $4\text{X}7\text{X}5\text{cm}$ 이다.

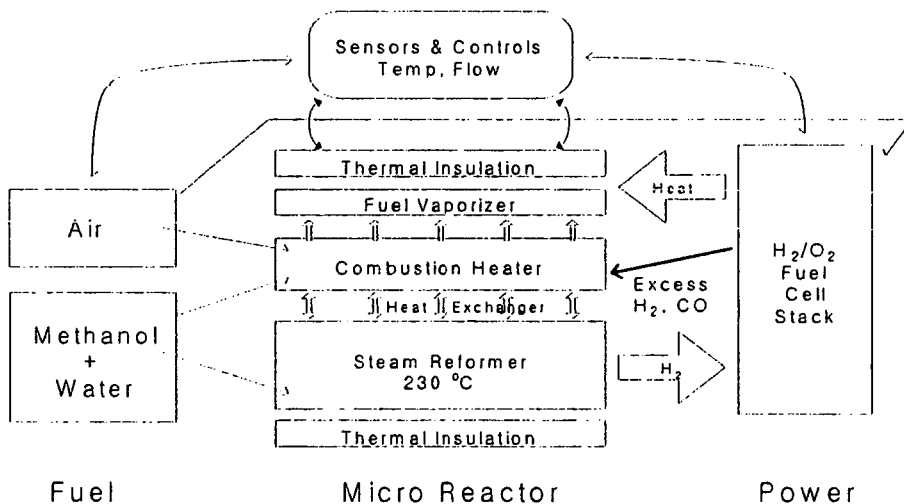


Fig.1. 소형 메탄올 개질기 시스템 구성도.

통합반응기의 운전은 초기 봉형 전기 발열체에 의하여 반응온도까지 반응기를 가열하였으며, 이렇게 초기 기동된 반응기는 메탄올을 연료로 하는 연소기에 의하여 반응온도를 유지하였으며 연소기에 의하여 반응열을 공급받은 개질기는 메탄올 개질 반응을 수행하며 반응 조건에 따라 수소를 포함하는 개질 가스를 생산하였다. 통합 반응기의 운전 변수로는 반응 온도, 개질기 연료의 메탄올/수증기 비, 연소기의 연료량 등이었으며, 각 경우에 있어서 개질가스의 발생량 및 개질가스의 조성을 측정하여 통합반응기의 성능을 확인하였다. 생성 기체의 농도 분석을 위해 기상 생성물은 Gas Chromatography (Agilent 6890N)로 개질가스를 정량 정성 분석하였으며, 액상 생성물은 굴절계를 사용하여 메탄올 전환율을 측정하였다.

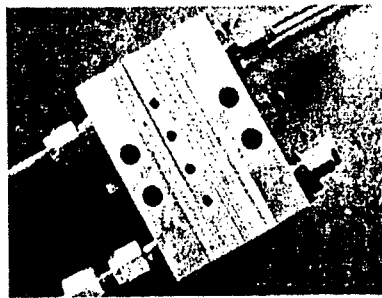


Fig.2. 메탄올 개질 통합 반응기.

3. 결과 및 고찰

통합 반응 시스템을 운전하면서 연소기에 공급되는 연료의 종류, 필요한 연료의 양, 개질 반응에 필요한 반응물의 조성, 반응물의 공급량, 반응온도의 영향 및 그에 따른 생성물의 조성 등을 고찰하여 최적 운전 조건을 도출하였다.

Fig.3에서와 같이 250°C에서 시작된 통합 반응기의 운전에서 통합 시스템의 반응온도를 270-300°C 범위에서 유지하기 위해서는 0.17ml/min의 메탄올이 연소기에 공급되어야 하며, 이때 S/C비가 1.1인 0.1ml/min의 반응물이 개질기에 공급되었을 때 약 125ml/min의 개질가스가 발생되었다. 이 때 개질가스의 조성은 63-64%의 수소, 23%의 이산화탄소 및 3.7%의 일산화탄소로 구성되었으며 비교적 높은 일산화탄소 농도를 보였다. 하지만 일산화탄소 농도는 반응온도의 최적화 과정을 통하여 1% 범위까지 줄일 수 있었으며, 개질 반응에 필요한 열원은 전기열원 혹은 수소나 메탄올의 연소에 의한 연소기 열원이든간의 종류에 관계없이 반응온도에만 의존하는 동일한 결과를 보여주었다.

그 외 반응물 및 반응온도의 영향은 단일 개질 반응기에서와 유사한 결과를 보였으며, 연소기에 의한 전체 반응시스템의 온도 제어는 전기열원에 비하여 세심한 운전이 필요하며 전체 반응 시스템의 효율 향상을 위해서는 반응기의 부피 감소 및 반응기 구성의 최적화, 단열 및 촉매의 성능 향상 등이 필요함을 알 수 있었다. 또한 실제 시스템의 적용을 위해서는 시스템 기동시 요구되는 급격한 열충격에 적용 가능한 안정된 촉매의 개발이 필수적이며, 연료전지 시스템으로 공급되는 개질가스의 CO농도를 10ppm 미만으로 제어할 수 있는 반응

시스템이 추가적으로 필요하다.

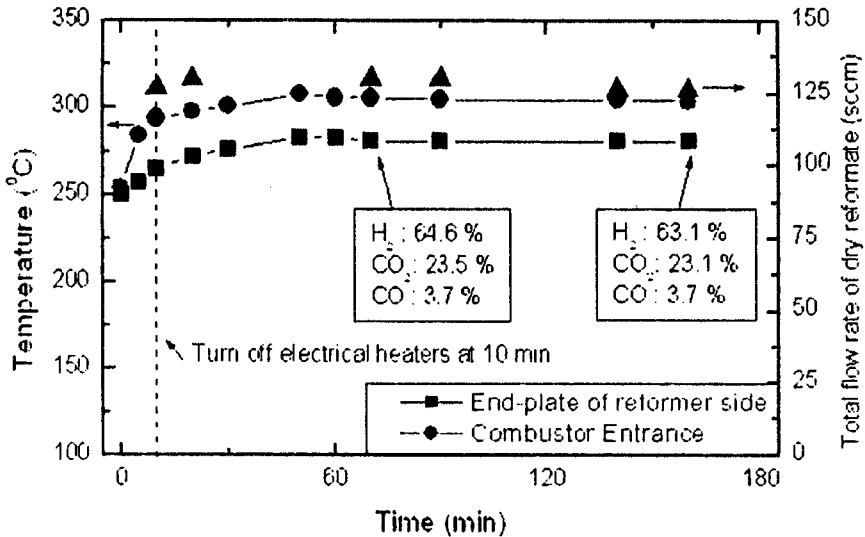


Fig.3. 통합 시스템 성능 평가: 개질반응물 0.1ml/min(S/C=1.1), 촉매연소반응물 0.17ml/min 메탄올 + 858ml/min air.

4. 결론

금속 박판에 마이크로채널을 형성하고 단위 박판을 적층하여 연료 증발기, 열교환기, 개질 반응기 및 촉매연소기로 구성되는 4X7X5cm 크기의 통합 반응기를 개발하였다. 제작된 통합반응기에서 자체 열원에 의한 독립 운전으로 약 125ml/min의 개질 가스 생성이 가능하였으며, 여러 운전 조건에 대한 영향 고찰 및 최적 반응기 구성을 위한 설계를 바탕으로 실제 시스템에 적용 가능한 소형 메탄올 개질 시스템의 개선 방안 및 개발 방향을 제시하였다.

참고문헌

1. J.D. Holladay, E.O. Jones, M. Phelps and J. Hu, J. Power Sources 108 (2002) 21.
2. N. Ogura, Y. Kawamura and A. Igarashi, Proceedings of 2002 Fuel Cell Seminar, Palm springs, CA., Nov. 18-21, 2002, 243.
3. Y. Kawamura, N. Ogura, T. Katsumata and A. Igarashi, Proceedings of 2002 Fuel Cell Seminar, Palm springs, CA., Nov. 18-21, 2002, 699.
4. G.-G. Park, D.J. Seo, S.-H. Park, Y.-G. Yoon, C.-S. Kim, W.-L. Yoon, Chem. Eng. J. 101 (2004) 87.