

곡유로 채널을 가지는 수증기-메탄올 개질기에서 유량 변화에 따른 메탄올 전환율 및 물질 전달에 관한 연구

장 현* 박인성* 서정세**†

* 경상대학교 기계공학부, ** 경상대학교 기계공학부&공학연구원

Study on Methanol Conversion Efficiency and Mass Transfer of Steam-Methanol Reforming on Flow Rate Variation in Curved Channel

Hyun Jang*, In Sung Park* and Jeong Se Suh**†

* Graduate school of Mechanical Engineering, Gyeongsang Nat'l Univ,

** School of Mechanical Engineering, Gyeongsang Nat'l Univ. & ERI

(Received October 31, 2014 ; Revised December 26, 2014 ; Accepted December 30, 2014)

Key Words: Steam-Methanol Reforming(수증기-메탄올 개질), Curved Channel(곡유로), Methanol Conversion Efficiency(메탄올 전환율), Reformer(개질기)

초록: 본 연구에서는 전산유체역학 상용 코드를 이용하여 곡유로 채널형 수소 개질기에 대한 수치 해석적 연구를 수행하였다. 상용코드에서 제공하는 연소모델의 사전 검증을 위하여 원통 채널형 개질기 형을 가지는 선형연구모델⁽²³⁾에 대한 수치해석을 선행하여 수행하였고, 95% 이상 일치하는 결과를 얻을 수 있었다. 선형연구모델의 수치해석을 통해 연소모델에 대한 해석 타당성검증이 완료된 후, 반응기 형태 변화가 메탄올 전환율과 수소생성에 미치는 영향을 파악하여 기존보다 유로의 길이가 증가한 곡유로 채널형 개질기를 설계하고, 유량조건(10/15/20 $\mu\text{l}/\text{min}$)을 변수로 수치해석을 수행하였다. 그 결과 원통 채널형 개질기와 곡유로 채널형 개질기에서 발생하는 유동 특성 및 물질전달 특성을 파악할 수 있었고, 그리고 유량에 따른 메탄올 전환율 및 수소 생성에 관한 유용한 정보를 얻을 수 있었다.

Abstract: In this study, numerical analysis of curved channel steam-methanol reformer was conducted using the computational fluid dynamics (CFD) commercial code STAR-CCM. A pre-numerical analysis of reference model with a cylindrical channel reactor was performed to validate the combustion model of the CFD commercial code. The result of advance validation was in agreement with reference model over 95%. After completing the validation, a curved channel reactor was designed to determine the effects of shape and length of flow path on methanol conversion efficiency and generation of hydrogen. Numerical analysis of the curved-channel reformer was conducted under various flow rate (10/15/20 $\mu\text{l}/\text{min}$). As a result, the characteristics of flow and mass transfer were confirmed in the cylindrical channel and curved channel reactor, and useful information about methanol conversion efficiency and hydrogen generation was obtained for various flow rate.

1. 서론

기술발전으로 인하여 휴대용 스마트기기의 보급이 활성화되면서부터 스마트기기의 고효율·소형화를 위하여 시스템에 안정적으로 균일한 에너

지를 공급하기 위한 초소형 마이크로 연료전지용 수소 생산이 큰 이슈로 부상하고 있다.⁽¹⁾

Fig. 1에 확인할 수 있듯이 마이크로 연료전지는 일반적인 재충전용 전지기술에 비해 매우 높은 전력밀도를 지니고 있으며, 현재 상용화되고 있는 일반전지에 비해 3배 이상인 200~400 Wh/kg의 전력밀도를 지니고 있으며, 이론적으로

† Corresponding Author, jssuh@gnu.ac.kr

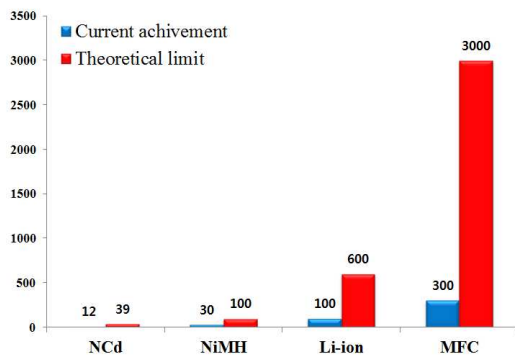


Fig. 1 Comparison of energy densities between different types of batteries

는 최대 3,000 Wh/kg의 전력밀도까지 개발이 가능한 것으로 알려져 있다.

마이크로 연료전지는 스마트폰, PDA, 노트북, 캠코더 등의 휴대용 스마트기기와 원격센서 및 초소형 액추에이터(actuator) 등에 전원 공급원으로 사용될 수 있으며, 소형기기의 장시간 야외 사용을 가능하게 할 것으로 보인다.

일반적으로 수소는 물의 전기분해, 생물학적 방법 등 여러 가지 기술을 통하여 생산할 수 있지만, 개발된 기술 중 현재까지 가장 안정적이며 경제적으로 수소를 대량으로 생산할 수 있는 방법은 천연가스, 가솔린 등과 같은 화석연료를 개질하여 수소를 생산하는 방식이다. 천연가스나 가솔린, 메탄올과 같은 연료로부터 수소를 생산하는 기술은 암모니아 합성 공정과 같은 기존의 석유화학 공정에서 일반적으로 쓰이는 기술이지만, 연료전지의 여러 가지 특성에 따른 제약조건들 때문에 직접적으로 연료전지 생산 프로세스에는 적용하지 못하고 있는 실정이다.

기존의 배터리를 대체할 목적으로 마이크로 연료전지에 대한 기술 개발이 활발하게 이루어지고 있으며, 대부분의 연료전지는 다른 종류의 연료공급원과 비교하였을 경우, 낮은 탄소결합력과 더불어 가솔린에 비해 높은 탄소 수소 비를 가지고 있을 뿐만 아니라, 메탄과 비교하였을 때 더 낮은 온도(200-300°C)에서 수소를 보다 효율적으로 생산할 수 있는 메탄올⁽²⁾ 등의 연료로부터 수소를 취득하는 방식으로서 개질기(Reformer)가 요구되며, 이러한 개질기는 반응과정에서 발생하는 열을 이용하면, 최대 80% 가까이 에너지로 바꿀 수 있다.

따라서 소형기기 등에 가장 많이 이용되는 PEMFC의 개발에 있어 시스템의 효율을 극대화

하고 안정화하기 위해서는 Stack에 수소연료를 공급하는 마이크로 개질기가 필요하며, 개질기의 효율을 향상시키기 위한 연구가 반드시 필요하다고 한다.

이전부터 수증기-메탄올 개질기에 대한 열효율 및 열전달에 대한 기초자료를 제공하고 많은 연구들이 수행되었으며, 이에 대한 많은 동역학적 모델을 제시하였다.⁽³⁻⁸⁾

Amphlett 등⁽³⁾은 구리계열의 촉매에 의한 개질을 통하여 수소를 생산하는 플러그 유동 반응기의 수학적 반응물이 포함된 준 실험적 동역학적 모델을 제안하였고, Park 등⁽⁹⁾은 Amphlett의 반응 동역학적 모델을 사용하여 수증기-메탄올 개질에서의 물질전달에 관한 1차원적 수치해석을 수행하였다. Karim 등⁽¹⁰⁾은 촉매 충전 베드 반응기에서 2차원 모사균일 수치해석을 수행하였다. 그리고 Suh 등⁽²³⁾은 각 성분의 구성물이 개질기를 통과할 때, 메탄올-수증기 개질기의 2차원 변화를 고려한 가스혼합물의 전달 및 열적 특성의 해석과 개질기 내 메탄올 전환효율에 미치는 영향 등에 관한 연구를 수행하였다.

또한 이와 관련하여 국내에서의 마이크로 수소 개질기에 대한 대부분의 연구들은 원통 또는 장방향 사각 채널 내에 촉매를 충전 하는 방식으로 이루어지고 있다. 이러한 개질기는 변환효율이 상대적으로 낮아, 변환효율을 높이기 위해서는 촉매제의 온도를 높이는 방식으로 대처하고 있는 실정이다. 따라서 반응기 내의 개질 변환에 대한 체계적인 분석이 이루어지지 못하면서 개질기의 최적화 및 성능 개선에 한계를 나타내고 있다.

본 연구에서는 기존의 수증기-메탄올 개질 방식에 기초한 충전층 마이크로 개질기의 문제점을 극복하고, 변환성능을 보다 향상시킬 수 있도록 하기 위해, 개질기의 유로길이를 늘이고, 개질기를 Micro-PEMFC에 적용하기 편리하게 하도록 하기 위하여 기판 장착에 유리한 곡유로 채널형 개질기를 대상으로 CFD 상용코드(STAR-CCM+)를 활용하여 곡유로 채널(Curved-channel)을 가지는 수증기-메탄올 개질기에 대한 수치 해석적 연구를 수행하였다.

2. 수증기-메탄올 개질과정

본 연구에서 메탄올은 Fig. 2에서와 같이 구리계열의 촉매 (CuO/ZnO/Al₂O₃)로 충전 된 마이크

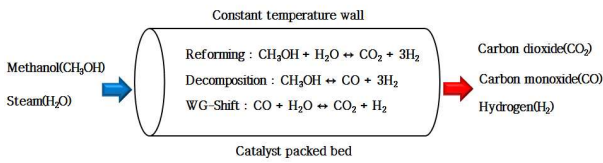


Fig. 2 Principle of steam-methanol reforming in micro reactor

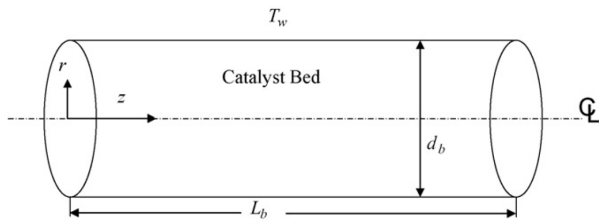
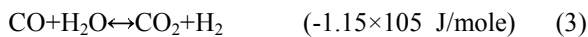
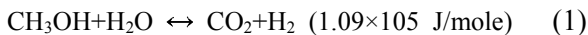


Fig. 3 Schematic diagram of the modeling domain in the reactor

로 개질기에서 Amphlett 등⁽³⁾이 기술한 것과 같이 두 가지의 총합 반응에 의하여 개질된다. 개질기에서 발생하는 이 두 가지의 총합 반응은 메탄올과 수증기가 반응하여 이산화탄소(CO₂)와 수소(H₂)를 생성하는 개질반응(Reforming, 흡열반응), 메탄올이 직접 분해되어 일산화탄소(CO)와 수소(H₂)를 생성하는 분해반응(Decomposition, 흡열반응)이다. 또한, 물-가스 전환반응(Water-Gas shift reaction, 약한 발열반응)을 통하여 채널 내 생성 가스의 구성을 조절하게 되는데, 물-가스 전환 반응은 Amphlett 등⁽³⁾에 의해 기술된 것에 따르면 메탄올의 농도의 정확도에서 물질 손실 없이 무시될 수도 있다고 하였다.



3. 수치해석모델 검증

본 연구에서는 STAR-CCM+에서 제공하는 수정된 Arrhenius Form에 기초한 Eddy-Break Up 연소 모델을 이용하여 개질기 내 반응에 대하여 수치 해석을 수행하였다. 상용코드에서 제공하는 연소 모델의 수치해석에 대한 타당성을 검증하기 위하여 Suh 등⁽²³⁾의 선행 연구를 참고모델(reference model)로 선정하여 수치해석에 대한 검증을 수행

Table 1 Geometric parameters and boundary conditions

Descriptions	Specifications
Diameter of catalyst bed	1.0 × 10 ⁻³ m
Length of catalyst bed	10.0 × 10 ⁻³ m
Porosity of catalyst bed	0.35
Thermal conductivity of catalyst bed	0.3 W/m·K
Mass flow rate	10 μl/min
Inlet temperature	120 °C
Wall temperature(T _w)	220 °C
Molar ratio of steam to methanol(SMR)	SMR 1.1
Lennard-Jones parameter	Mills[16]
Specific heat	Thermodynamic NASA Polynomial Data, 2007
Void-tortuosity ratio	Mills[16]

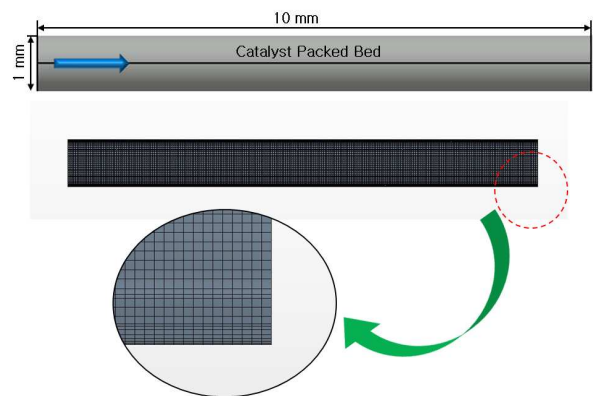


Fig. 4 three dimensional modeling and mesh generation for simulation

하였다. Fig. 3은 참고모델의 개략도를 나타낸 것이다. 이 선행연구 모델은 BASF社에서 제공하는 구리 계열의 촉매로 충전된 원통 채널형 반응기 형태를 가지고 있으며, 구체적인 수치와 경계조건은 Table 1에 도시된 것과 같다.

3.1 3차원 모델링 및 격자생성

상용코드에서 제공하는 연소모델의 검증을 수행하기 위해서 Fig. 4와 같이 CATIA V5를 이용하여 3차원 모델링을 수행하였다. 이 모델은 선행연구모델과 동일한 1 mm의 직경에 10 mm의 길이를 가지는 원통 채널형 개질기 형태의 반응

Table 2 The range of parametric study

Reaction	Range of pre-exponential factor	Remark
Reforming	1.0×10^1 $\sim 1.0 \times 10^{15}$	3.950×10^{10}
Decomposition	1.0×10^1 $\sim 1.0 \times 10^{15}$	3.150×10^{13}
WG-Shift reaction	1.0×10^1 $\sim 1.0 \times 10^{15}$	2.500×10^8

기이다. 그리고 수치해석을 수행하기 위하여 격자 생성 프로그램을 이용하여 육면체격자(Trimmer mesh) 약20만개를 생성하였고, 촉매로 충전된 반응기 전체를 다공성물질(Porous media)로 가정하고 수치해석을 수행하였으며, 경계조건은 선행연구와 동일하게 적용하였다.

3.2 화학반응모델(Chemical reaction model)

본 연구에서는 마이크로 개질기 내부에서 발생하는 반응속도를 제어하기 위해 상용코드에서 제공하는 연소모델인 Eddy-Break Up 연소모델의 유한율 운동(Finite-rate kinetic)모델을 적용하였다. 유한율 운동 모델에서는 식 (4)에서와 같이 반응기 내에서 화학 반응에 관여하는 구성성분들과 온도의 함수로 정의된 수정된 형태의 아레니우스 식으로(Modified Arrhenius Form) 표현되고 있다.

$$R_j = R_{i,kin} = - A_j T^{\beta_j} e^{-E_{a,j}/R_u T} \quad (4)$$

여기서 A_j , β_j 그리고 $E_{a,j}$ 는 각각 반응하는 구성 물질 J^{th} 에 대한 선인자계수 (Pre- exponential factor), 온도지수(Temperature exponent) 그리고 활성화 에너지(Activation energy)를 나타내며, R_u 은 일반기체상수(Universal Gas constant, $R_u=8314.4621$ J/kmol·K)를 T 는 반응온도를 나타낸다.

이 수정된 아레니우스 식에서 선인자계수를 제외한 나머지 값들은 대부분 참고문헌의 통하여 얻을 수 있는 상수 값들이지만, 선인자계수의 경우 반응기 내부에서 발생하는 주요 3가지 화학반응에 대하여 온도조건 변화에 따라 각각의 상수 값을 가지기 때문에 선행연구 등에서 수행하였던 방법들과 동일하게 Table 2와 같은 범위 내에서

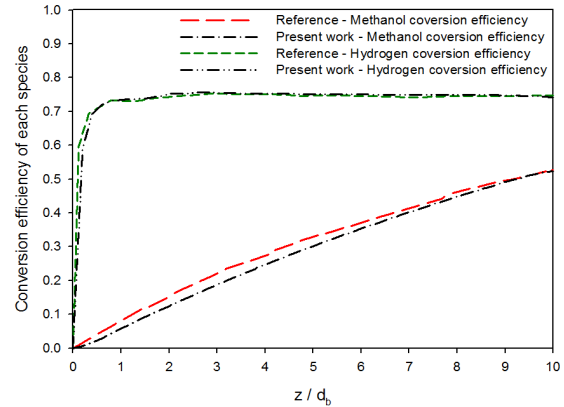


Fig. 5 Comparison of conversion efficiency of each species along the axial direction of the reactor

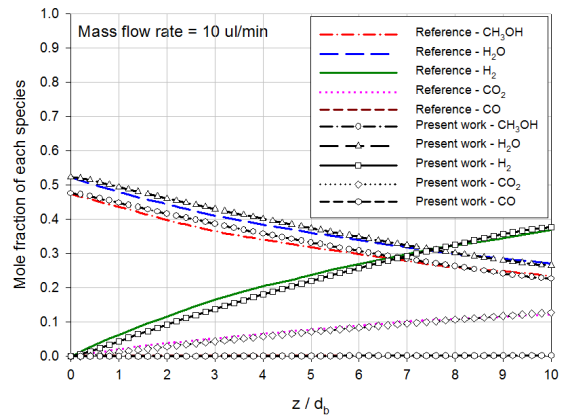


Fig. 6 Comparison of mole fraction of each species along the axial direction of the reactor

반복적인 수치 해석을 수행하였다. 이 결과를 Suh 등^(23,24)의 수치해석 및 실험적 결과와 비교·분석을 통하여 그 범위를 조금씩 줄여가는 방식을 통하여 각 반응에 적절한 선인자계수 도출하였고, 이 값을 수정해 가며 수치해석에 적용하였다.

3.3 연소 모델 검증

Fig. 5~6은 reference model과 상용코드에서 제공하는 연소모델을 이용한 현재의 수치해석 결과를 비교하여 나타낸 것이다.

입구 측에서 수증기-메탄올 혼합물(SMR 1.1) 이 촉매(BASF F3-01, CuO/ZnO/Al₂O₃)로 충전된 반응기 내에서 촉매와 이질반응(Heterogenous)을 통하여 수소, 이산화탄소 그리고 일산화탄소를 생성하게 되는데, reference model에서는 촉매로 충전된 반응기를 떠나는 순간의 최종 메탄올 전환율은 50% 정도이며, 수소 전환율은 입구에서 가까운 영역을 제외하고 대부분의 영역에서 70% 수준을 나타내고 있음을 확인할 수 있다. 이

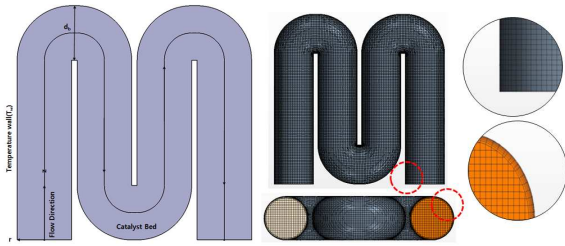


Fig. 7 three dimensional modeling and mesh generation of curved-channel in the reactor

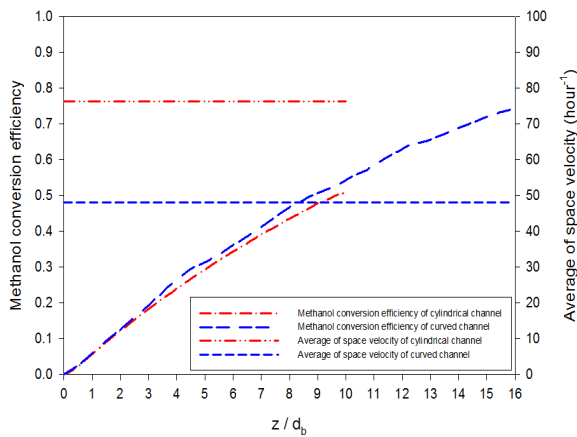


Fig. 8 Comparison of conversion efficiency of cylindrical channel and curved channel in the reactor

reference model의 결과를 상용코드에서 제공하는 연소모델을 사용한 현재의 수치해석 결과와 비교해보면, 중간 영역의 일부구간을 제외하고는 95% 이상 일치하는 결과를 나타내고 있다. 이 결과를 통하여 상용코드에서 제공하는 연소모델을 이용한 개질기에 대한 수치해석 타당성에 대하여 충분히 검증된 것이라 판단하였다.

4. 곡유로 채널을 가지는 수소 개질기

4.1 모델링 및 격자생성

Reference model의 검증 과정을 통하여 상용코드에서 제공하는 연소모델의 수치해석 타당성을 검증할 수 있었고 또한, 이 검증 과정을 통해 촉매 반응기 내의 메탄올 전환율과 수소 생성은 입구에서 유입된 혼합물(Methanol mixture)의 촉매로 충전된 반응기 내에서의 체류 시간(residence time)과 밀접한 관계를 가진다는 것을 다시 한 번 확인할 수 있었다. 따라서 Fig. 7과 같이 반응기 유로의 길이를 reference model보다 160% 증가한 16 mm의 유로 길이를 가지는 곡유로 채널 형태의 반응기를 설계하고, 앞에서와 동일한 형태의

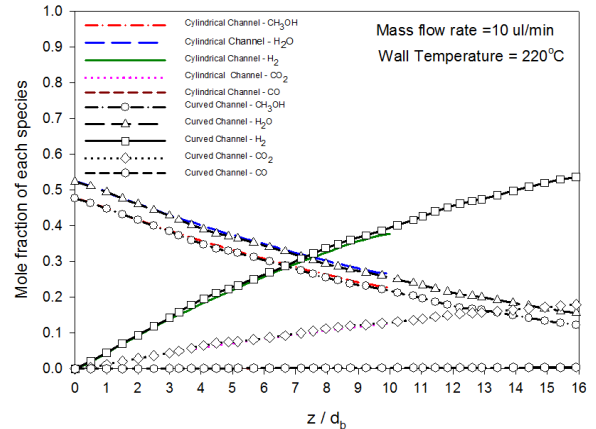


Fig. 9 Comparison of mole fraction of cylindrical channel and curved channel in the reactor

육면체 격자(Trimmer mesh)를 80만개 생성하여 수치해석에 이용하였다. 곡유로 채널형 반응기의 수치해석 조건은 유량(10/15/20 μl/min)을 제외하고는 모두 이전 과정에서와 동일한 조건하에서 수치해석을 수행하였다.

4.2 곡유로 채널형 개질기 수치해석 결과

촉매 반응기 유로의 길이와 형태가 메탄올 전환율과 수소 생성에 미치는 영향을 파악하기 위하여 원통 채널형 개질기와 곡유로 채널형 개질기에 대하여 반응기 내 공간 속도와 메탄올 농도 분포를 각각 Fig. 8과 Fig. 9에 나타내었다.

원통 채널형 개질기와 곡유로 채널형 개질기에서의 메탄올 전환율의 분포를 비교해 보면, 모든 지점에서 원통 채널형 개질기보다 곡유로 채널형 개질기의 메탄올 전환율이 상대적으로 높은 경향성을 보이며, 이러한 전환율의 차이는 유동 방향에 따라 격차가 점차적으로 증가하고 있는 것을 Fig. 8에서 확인할 수 있다. 이는 곡유로 채널형 개질기의 유로의 길이가 증가함에 따라 반응기의 체적(Volume)이 증가하게 되고, 이는 반응기 내 전체적인 공간속도를 감소시키기 때문에 메탄올 혼합물의 체류시간이 상대적으로 증가했기 때문인 것으로 보인다. 여기서 촉매 반응기 내 공간속도는 Liao 등⁽²⁷⁾에 의해 식 (5)와 같이 정의된다.

$$\text{Space velocity} = \frac{\text{Reactant flowrate}}{\text{Reactant volume}} \quad (5)$$

원통 채널형 개질기의 경우, 반응기를 떠나는 순간의 메탄올 전환율은 50% 수준에 불과하지만,

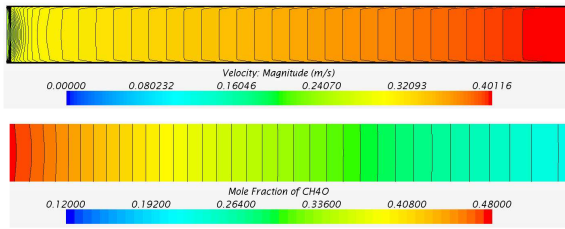


Fig. 10 Contours of velocity and mole fraction of cylindrical channel for feed flow rate of 10 μ l/min

원통 채널형 개질기보다 유로의 길이가 160% 증가한 곡유로 채널형 개질기의 경우 메탄올 전환율은 75%로 기존보다 약25% 정도 개선되었음을 또한 Fig. 8에서 확인할 수 있다.

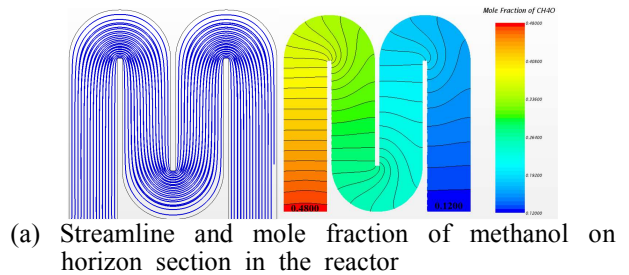
Fig. 9에 나타난 것과 같이 이때 생성된 수소 (H_2)의 몰분율(Mole fraction)은 각각 0.37과 0.54로 메탄올 전환율과 마찬가지로 원통 채널형 개질기보다 곡유로 채널형 개질기에서 약30% 증가하였다. 그리고 생성된 이산화탄소(CO_2)의 몰분율은 각각 0.12와 0.18로써 동일한 수준에서 증가하였고, 일산화탄소(CO)는 모든 경우에서 몰분율을 0.0035이하 수준을 유지하고 있다.

Fig. 10과 Fig. 11에서는 곡유로 채널형 개질기의 곡관 부분에서 발생하는 유동 특성 및 물질 전달 특성을 파악하기 위하여 각각 원통 채널형 개질기에 대해 수평 단면과 수직단면의 속도 분포와 메탄올의 몰분율에 대한 분포를 나타내고, 곡유로 채널형 개질기에 대해 유로의 직관 부분과 곡관 부분의 유동 분포 및 메탄올의 몰분율의 분포에 대하여 비교하여 나타내었다.

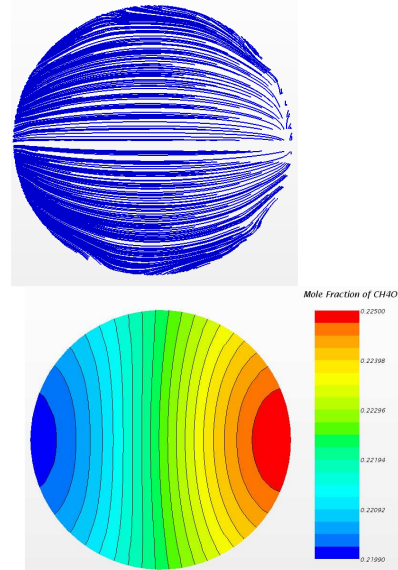
원통 채널형 개질기의 경우, 반응기 내에서 반경 방향에 대한 속도 분포가 거의 균일하기 때문에 메탄올의 농도 분포 또한 반경 방향에 대하여 1% 내외의 아주 미소한 편차만을 나타내고 있음을 Fig. 10에서 확인할 수 있다.

곡유로 채널형 개질기의 경우에는 Fig. 11에서와 같이 유로의 직관 부분에서는 원통 채널형 개질기와 마찬가지로 반경 방향에 대하여 유동 분포가 상당히 균일하기 때문에 반경 방향에 대한 메탄올 농도 분포 또한 원통 채널형 개질기와 동일하게 균일한 형태를 나타내고 있다.

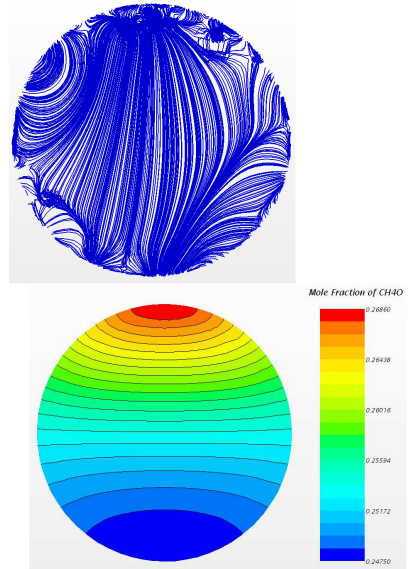
반면 곡유로 채널형 개질기의 유로의 곡관 부분에서는 베르누이의 원리에 의해 내측과 외측에서는 유속 차이가 발생하게 된다. 유로의 내측 속도는 외측속도에 비하여 상대적으로 유속이 느



(a) Streamline and mole fraction of methanol on horizon section in the reactor



(b) Streamline and mole fraction of methanol on vertical section (straight tube part)



(c) Streamline and mole fraction of methanol on vertical section (curved tube part)

Fig. 11 Contours of streamline and mole fraction of curved channel for feed flow rate of 10 μ l/min

려지게 되고, 이렇게 상대적으로 유속이 느린 외측 부분에서는 내측부분보다 메탄올의 반응기 내

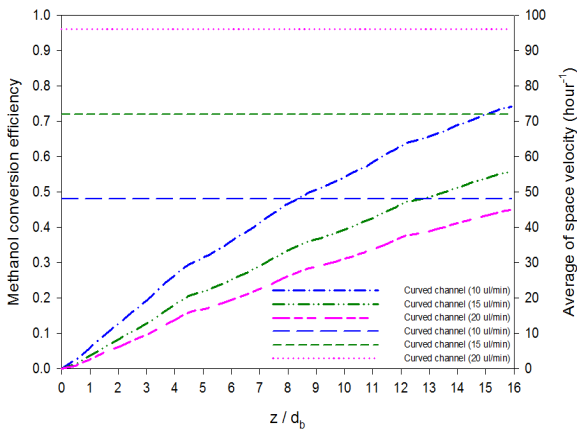


Fig. 12 Comparison of conversion efficiency for feed flow rate variations in the reactor

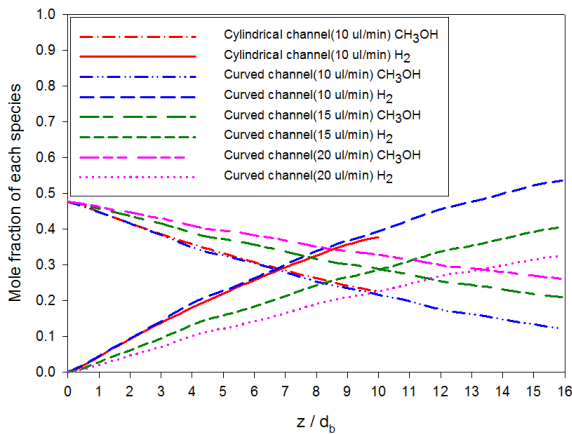


Fig. 13 Comparison of mole fraction for feed flow rate variations in the reactor

체류 시간 즉, 촉매와의 반응 시간이 증가하여 유속이 빠른 내측에 비해 메탄올의 전환 반응이 보다 활발하게 일어나게 된다. 이때 곡관이 끝나는 지점의 유로의 내측과 외측의 메탄올 몰분율은 최대 0.037의 차이를 보인다.

메탄올 전환율 관점에서만 본다면 당연히 유로의 길이가 증가하면서 메탄올의 전환율이 80% 수준까지 개선되고, 공간 활용도와 함께 Micro-PEMFC 적용이 용이한 곡유로 채널형 개질기가 유리할 것으로 판단되지만, 촉매의 전체적인 효율을 고려할 경우에는 조금 불리해 보인다.

Fig. 12와 Fig. 13은 곡유로 채널형 반응기에서 메탄올 혼합물의 유량변화(10/15/20 $\mu\text{l}/\text{min}$)에 따른 메탄올의 전환율과 유동 방향에 따른 메탄올과 수소의 몰분율 분포를 나타내고 있다.

Fig. 12에서 입구에서 유입되는 혼합물의 유량이 증가함에 따라 메탄올 전환율이 현저하게 감소되는 것을 확인할 수 있다. 유량이 10 $\mu\text{l}/\text{min}$ 인

경우의 메탄올 전환율은 75%에 달했지만, 15 $\mu\text{l}/\text{min}$ 인 경우 메탄올 전환율이 20% 감소한 55%를 나타내었고, 그리고 20 $\mu\text{l}/\text{min}$ 인 경우에는 메탄올은 전환율이 30% 감소되어 45% 수준을 보였다. 이는 유량의 증가에 따라 반응기 내 공간 속도가 증가하게 되고, 이에 따라 메탄올의 반응기 내 체류 시간이 급격히 감소하였기 때문인 것으로 판단된다. 이 때, 각 유량 조건에 대한 반응기를 떠나는 순간의 생성된 수소의 몰분율은 0.54, 0.40, 0.30 이고, 잔여 메탄올의 몰분율은 각각 0.12, 0.20, 0.25 임을 Fig. 13에서 확인할 수 있다.

5. 결론

본 연구에서는 상용 촉매인 BASF F3-01 ($\text{CuO}/\text{ZnO}/\text{Al}_2\text{O}_3$)로 충전된 곡유로 채널형 마이크로 수증기-메탄올 개질기에 대하여 CFD 상용코드에서 제공하는 연소모델을 활용하여 수치해석을 수행하였고, 원통 채널형 개질기와 곡유로 채널형 개질기의 유동특성 및 물질전달 특성에 대하여 파악하고, 입구에서 유입되는 혼합물의 유량과 메탄올 전환율 및 수소생성에 대하여 다음과 같은 유용한 결과를 얻을 수 있었다.

(1) 원통 채널형 개질기 선행연구모델⁽²³⁾에 대해 CFD 상용코드에서 제공하는 연소모델로 수치해석 검증을 수행하여, 촉매로 충전된 마이크로 메탄올-수증기 개질기 내에서 발생하는 유동 특성 및 물질 전달 특성에 대하여 수치적 해석이 가능하다는 것을 확인하였다.

(2) 입구에서 유입되는 혼합물의 유량과 메탄올 전환율은 밀접한 연관성을 가지고 있는데, 유입되는 메탄올 혼합물의 유량이 증가하게 되면 촉매 반응기 내 공간속도(Space velocity) 또한 증가하고 되고, 메탄올 혼합물의 반응기 내 체류시간(residence time)을 감소하게 되므로, 메탄올 전환율은 감소되고, 반대로 혼합물의 유량이 감소할 경우 공간속도가 감소하고, 체류시간이 증가하여 메탄올 전환율이 상승하게 되는 경향성을 나타내었다.

(3) 원통채널형 개질기의 경우, 반경 반향에 대하여 유동 분포가 균일하게 때문에 메탄올의 농도 분포 또한 상당히 균일하였지만, 곡유로 채널형 개질기의 경우, 유로의 곡관부위에서 발생하는 유속 차이로 인하여 메탄올의 분포가 차이를 보였으며, 그 차이는 곡관이 끝나는 지점에서 물

분율의 차이가 가장 크게 발생하였다.

(4) 본 연구에서와 같은 곡유로 채널형 반응기에서 80% 이상의 높은 메탄올 전환율을 얻기 위해서는 입구에서 유입되는 메탄올 혼합물의 유량을 10 $\mu\text{l}/\text{min}$ 미만으로 유지하거나 유로의 길이를 지금보다 10% 이상 증가한 18 mm 이상으로 설계해야 할 것으로 판단된다.

후 기

본 연구의 일부는 한국연구재단 "일반연구자 지원사업"(NRF-2013R1A1A4A01012977)과 CK사업(지방대학특성화사업)의 지원으로 이루어졌으며, 모든 관계자 분들에게 진심으로 감사의 말씀을 전해 드립니다.

참고문헌 (References)

- (1) Ghenciu, A.F., 2002, "Review of Fuel Processing Catalysts for Hydrogen Production in PEM Fuel Cell Systems," *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.* 6, pp. 389~399
- (2) Brown, L.F., 2001, "A Comparative Study of Fuels for On-board Hydrogen Production for Fuel-cell-powered Automobiles," *Int. J. Hydrogen Energy* 26, pp. 381~397.
- (3) Amphlett, J.C., Creber, K.A.M., Davis, J.M., Mann, R.F., Peppley, B.A. and Stokes, D.M., 1994, "Hydrogen-production by Steam Reforming of Methanol for Polymer Electrolyte Fuel-cells," *Int. J. Hydrogen Energy* 19, pp. 131~137.
- (4) Peppley, B.A., Amphlett, J.C., Kearns, L.M. and Mann, R.F., 1999, "Methanol-steam Reforming on Cu/ZnO/Al₂O₃ - Part 1: The Reaction Network," *Appl. Catal.* 179, pp. 21~29.
- (5) Peppley, B.A., Amphlett, J.C., Kearns, L.M. and Mann, R.F., 1999, "Methanol-steam Reforming on Cu/ZnO/Al₂O₃ Catalysts - Part 2: A Comprehensive Kinetic Model," *Appl. Catal. A-Gen.* 179, pp. 31~39.
- (6) Agrell, J., Birgersson, H. and Boutonnet, M., 2002, "Steam Reforming of Methanol Over a Cu/ZnO/Al₂O₃ Catalyst: A Kinetic Analysis and Strategies for Suppression of CO Formation," *J. Power Sources* 106, pp. 249~257.
- (7) Lee, J.K., Ko, J.B. and Kim, D.H., 2004, "Methanol Steam Reforming Over Cu/ZnO/Al₂O₃ Catalyst: Kinetics and Effectiveness Factor," *Appl. Catal. A-Gen.* 278, pp. 25~35.
- (8) Choi, Y.T. and Stenger, H.G., 2005, "Kinetics, Simulation and Optimization of Methanol Steam Reformer for Fuel Cell Applications," *J. Power Sources* 142, pp. 81~91.
- (9) Park, H.G., Lee, M.T., Hsu, F.K., Grigoropoulos, C.P. and Grief, R., 2004, "Transport in a Methanol Steam Reformer as the Fuel Processor for Fuel Cell Systems," *Proc. IMECE* 2004, pp. 1~7.
- (10) Karim, A., Bravo, J. and Datye, A., 2005, "Nonisothermality in Packed Bed Reactors for Steam Reforming of Methanol," *Appl. Catal. A: Gen.* 282, pp. 101~109.
- (11) Park, H.G., Malen, J.A., Piggott, W.T., Morse, J.D., Grief, R., Grigoropoulos, C.P., Havstad, M.A. and Upadhye, R., 2006, "Methanol Steam Reformer on a Silicon Wafer," *J. Microelectromech. Syst.* 15, pp. 976~985.
- (12) Yuan, J., Ren, F. and Sunden, B., 2007, "Analysis of Chemical-reaction-coupled Mass and Heat Transport Phenomena in a Methane Reformer Duct for PEMFC," *Int. J. Heat Mass Transfer* 50, pp. 687~701.
- (13) Lee, M.T., Grief, R., Grigoropoulos, C.P., Park, H.G. and Hsu, F.K., 2007, "Transport in Packed-bed and Wall-coated Steam-methanol Reformers," *J. Power Sources* 166, pp. 194~201.
- (14) Schmidt, L.D., 2005, "The Engineering of Chemical Reactions," Oxford University Press, New York.
- (15) Hill, C.G., 1977, "An Introduction to Chemical Engineering Kinetics and Reactor Design," John Wiley and Sons.
- (16) Mills, A.F., 2001, Mass Transfer, Prentice Hall, Upper Saddle River, N.J..
- (17) Mills, A.F., 1999, Heat Transfer, Prentice Hall, Upper Saddle River, N.J..
- (18) Wilke, C.R., 1950, "A Viscosity Equation for Gas Mixtures," *J. Chem. Phys.* 18, pp. 517~519.
- (19) Nield, D.A. and Bejan, A., 2006, "Convection in Porous Media," Springer Science-Business Media, New York.

- (20) Vargaftik, N.B., 1975, Tables of Thermophysical Properties of Liquids and Gases, McGraw-Hill, New York.
- (21) Incropera, F.P., Dewitt, D.P., 2002, Fundamentals of Heat and Mass Transfer, John Wiley and Sons.
- (22) Touloukian, Y.S., 1970, Thermal Conductivity: Nonmetallic Solids, IFI/Plenum, New York.
- (23) Suh, J.S., Lee, M.T., Grief, R. and Grigoropoulos, C.P., 2007, "A Study of Steam Methanol Reforming in a Microreactor," *J. Power Sources*, Vol. 173, pp.458-466.
- (24) Suh, J.S., Lee, M.T., Grief, R. and Grigoropoulos, C.P., 2008, "Transport Phenomena in a Steam Methanol Reforming Microreactor with Internal Heating," *Int. J. Hydrogen Energy*, in press.
- (25) Karki, K.C. and Patankar, S.V., 1988, "Calculation Procedure for Viscous Incompressible Flows in Complex Geometries," *Numerical Heat Transfer*, Vol. 14, pp. 295-307.
- (26) Patankar, S.V., 1980, Numerical Heat Transfer and Fluid Flow, Hemisphere, Washington, DC.
- (27) Liao, C. and Erickson, P.A., 2008, "Characteristic Time as a Descriptive Parameter in Steam Reformation Hydrogen Production Processes," *International Journal of Hydrogen Energy* pp.1652-1660.