

## 소형 연료전지를 위한 마이크로채널 연료 공급 장치 개발 Development of a Microchannel Fuel Processor for Small PEMFCs

운영기, 서동주, 박석희, 박구곤, 김창수  
한국에너지기술연구원, 저온연료전지연구센터

### 1. 서론

소형 고분자 연료전지(PEMFCs)를 이용한 휴대용 전원은 높은 발전효율 및 출력 밀도를 나타내고 연료 저장장치의 교환만으로 재충전이 가능한 장점 때문에 많은 연구가 이루어지고 있다. 휴대용 전원으로서 고분자 연료전지를 사용하기 위해서는 소형 연료전지의 개발뿐만 아니라 수소 공급 문제를 동시에 해결해야 한다. 소형 고분자 연료 전지를 위한 연료 저장 및 공급 장치는 높은 에너지 밀도 값을 가져야 하며 휴대에 적합한 작은 크기여야 한다.

메탄올은 이론적으로 높은 에너지 밀도를 가지며 상온에서 액상이므로 연료저장 카드리지의 취급 및 교환이 간편한 장점이 있으나 수소로 전환하기 위해서는 복잡한 반응기 시스템을 필요로 하므로 소형 고분자 연료전지에는 사용이 제한되어 있었다. 최근 들어 마이크로채널 반응기를 이용한 소형 수소 발생기를 소형 고분자 연료전지와 연계하여 휴대용 전원에 적용하려는 시도가 활발하다 [1-3].

마이크로채널 반응기란 밀리미터 이하 크기로 형성된 채널 내에서 반응과 열전달이 이루어지는 장치를 가리킨다. 마이크로채널은 단위 체적에 대해 매우 큰 면적의 구조를 만들 수 있으므로 열전달이 용이하여 채널의 크기가 작으므로 물질전달 경로가 감소하여 채널 내 촉매의 유효인자 증가가 가능하다. 일반적으로 마이크로채널 내부의 유체는 층상흐름을 보이므로 반응기내 체류시간 분포가 한정되어 신속한 응답특성을 보인다.

일반적인 고분자 연료전지용 개질 반응기 시스템은 액상연료의 증발을 위한 연료증발기, 수소를 생성하는 개질 반응기, 반응열과 증발열을 제공하는 촉매연소기 및 일산화탄소 제거기로 구성된다. 마이크로채널 연료 공급 장치에도 이러한 단위 장치들이 필요하다. 본 연구에서는 마이크로채널을 이용하여 연료 증발기와 메탄올 수증기 개질기를 제작하고 각 단위 장치를 연계하여 연료 공급 장치를 구성하였다. 구성된 연료 공급 장치에 필요한 열은 전기 열원을 사용하였다. 연료 공급 유량, 연료 성분비, 반응기 온도 등의 운전 조건에 따른 기체 생산량을 측정하였다. 생성 기체의 성분과 기체 생산량으로부터 연료 공급 장치의 수소 생산 용량을 결정하였다.

## 2. 실험방법

폭  $500\mu\text{m}$ , 깊이  $600\mu\text{m}$  이고 길이는  $33\text{mm}$ 인 사각 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. 알루미늄아 졸을 박판에 코팅하고  $60^\circ\text{C}$ 에서 건조시켰다. 분말 형태의 촉매와 알루미늄아 졸을 혼합하여 현탁액을 만들고 알루미늄아 층이 사전에 형성된 박판에 코팅하였다. 코팅된 박판은 다시  $60^\circ\text{C}$ 에서 건조 후  $350\text{--}400^\circ\text{C}$ 에서 열처리 하였다. 마이크로채널이 형성된 박판들을 적층하여 증발기와 개질 반응기를 제작하였다. 적층된 박판들은 종판(End plate)과 나사를 이용하여 고정시켰다. 종판의 벽면에는 봉형 전기 발열체를 삽입하여 증발이나 반응에 필요한 열을 공급하였다. 금속 박판을 적층하고 고정하는 방법은 Rouge 등[4]과 비슷한 방법을 사용하였다. 제작된 개질 반응기를 그림 1.에 나타내었다. 연료 공급 장치는 증발기와 개질 반응기로 구성하였다. 종판에 부착된 봉형 전기 발열체를 이용하여 증발기와 개질 반응기의 온도를 조절하였다. 연료 증발기의 온도는  $120^\circ\text{C}$ 를 유지하였으며 개질반응기의 온도는  $200^\circ\text{C}$ 에서  $260^\circ\text{C}$  까지 변화시키며 반응기 온도의 영향을 조사하였다. 액상 연료는 메탄올과 증류수를 혼합하여 제작하였으며 연료 혼합비에 따른 영향을 조사하였다. 액상 연료는 주사기 펌프를 사용하여 공급하였다. 공급된 액상 연료는 연료 증발기에서 증발되어 개질 반응기로 도입되며 반응기 내부에서 수증기 개질 반응에 의해 수소, 이산화탄소, 일산화탄소로 전환된다. 생산된 기체는 응축기를 거치면서 액상과 기상으로 분배된다. 응축기 후단에 비누거품 유량계를 설치하여 생성 기체의 유량을 측정하였다. 생성 기체의 농도 분석을 위해 기상 생성물을 G. C.(Agilent 6890N)로 분석하였고 액상 생성물은 굴절계를 사용하여 분석하였다. 반응기 온도에 따른 개질 반응기 내의 촉매 활성을 측정하였고, 액체 연료 유량, 연료 혼합비 등의 영향에 따른 연료 공급 장치의 성능을 측정하였다.

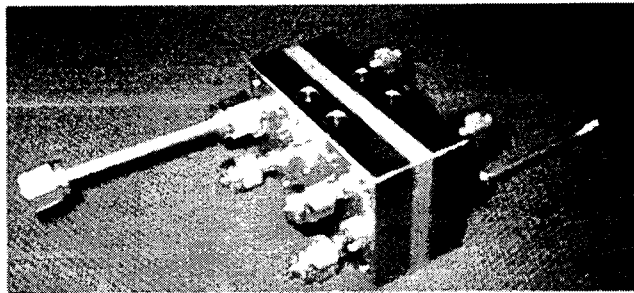


그림 1. 마이크로채널 개질 반응기

### 3. 결과 및 고찰

기화된 메탄올과 수증기는 Cu/ZnO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 촉매 상에서 수소를 포함하는 기체로 전환되며 수증기 개질에 관여하는 반응은 다음과 같이 나타낼 수 있다 [5-7].



반응식 (1)은 전체 반응에 해당하며 반응식(2)는 메탄올 분해반응을 나타낸다. 반응식 (3)은 수성 전이 반응을 나타낸다. 생성 기체의 성분을 그림 2.에 나타내었다.

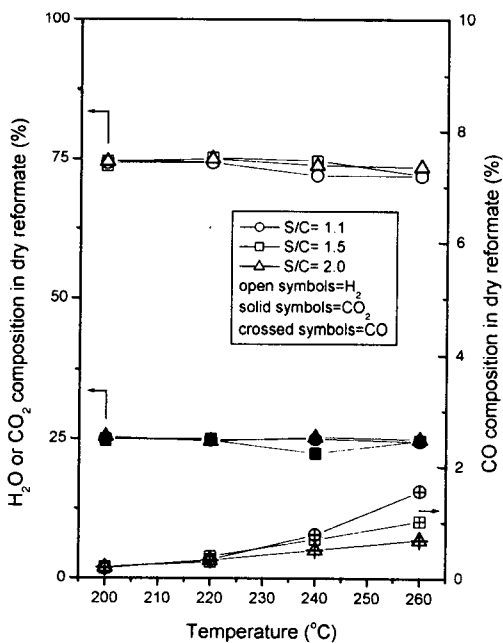


그림 2. 온도에 따른 생성가스 성분비  
(연료 공급 유량 = 0.1 ml/min)

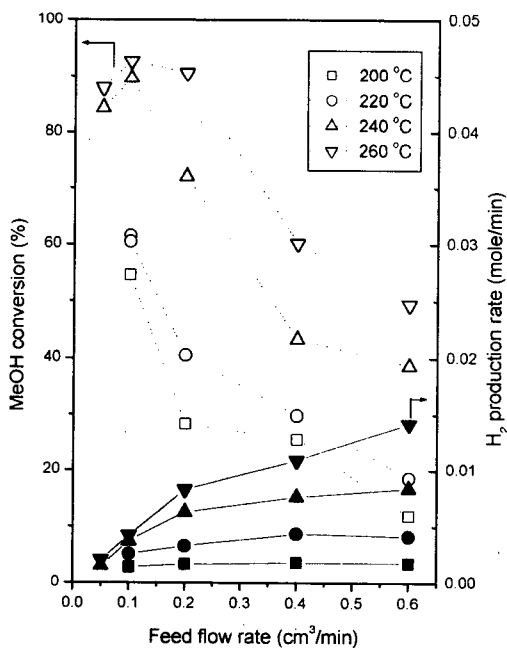


그림 3. 연료 공급 유량에 따른  
메탄올 전환율과 수소 생성량  
(S/C = 1.1)

그림 2.에서 개질 반응기에서 생성된 기체는 온도가 증가함에 따라 수소와 이산화탄소 농도가 약간 감소하였다. 일산화탄소 농도는 온도가 200℃에서 260℃로 증가함에 따라 0.17 %에서 1.6 % 까지 증가하였다. 그림 3.에는 연료 공급 유량에 따른 메탄올 전환율과 수소 생성량을 나타내었다. 연료 공급량이 늘어남에 따라 생성 수소량이 증가하지만 메탄올 전환율은 줄어든다. 또한 같은 연료 공급량에 대해 반응기 온도 증가에 따라 메탄올 전환율이 증가한다. 개발된 연료 공급 장치의 수소 생성량은 메탄올 전환율을 90% 이상으로 설정하면 260℃에서 0.2 ml/min의 액상 연료를 공급 할 때 최대의 수소 생성량을 나타내며 이 때 생성량은 0.0042 mol/min 였다.

#### 4. 결론

금속 박판에 마이크로채널을 형성하고 단위 박판을 적층하여 연료 증발기, 개질 반응기를 제작하였다. 구성된 증발기와 반응기를 조합하여 연료 공급 장치를 구성하였다. 구성된 연료 공급 장치에 메탄올과 증류수를 혼합한 액체 연료를 공급하면서 수소 생성량을 측정하였다. 반응기 온도, 연료 혼합비, 연료 공급량을 변화시키며 최적 운전 조건을 조사하였다. 개발된 마이크로채널 연료 공급 장치의 최대 수소 생성량을 결정하였다.

#### 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. A. Rouge, B. Spoetzl, K. Gebauer, R. Schenk, A. Renken, Chem. Eng. Sci. 56 (2001) 1419.
5. B. A. Pepply, J. C. Amphlett, L. M. Kearns, R. F. Mann, Applied Catalysis A : General 179 (1999) 21.
6. S. P. Asprey, B. W. Wojciechowski, B. A. Pepply, Applied Catalysis A : General 179 (1999) 51
7. X. Jhang, P. Shi, J. of Molecular Catalysis A : Chemical 3782 (2002) 1.