

금속모노리스 촉매를 이용한 리포머 개발 Reformer development utilizing metal-monolith-based catalysts

정현, 류재홍*, 윤왕래, 이호태, 박종수, 서동주
한국에너지기술연구원, 고려대학교 공과대학 생명화학공학부*

1. 서론

연료전지 용도로 천연가스, 휘발유, 디젤 등 화석연료를 일산화탄소와 수소의 혼합물인 합성가스로 전환하는 리포밍(reforming) 기술의 개발이 소형화, 고효율화 및 저가화의 방향으로 활발하게 진행되고 있다.

리포머의 소형화를 달성하기 위해서는 고속으로 주입되는 반응기체를 소량의 촉매로 처리해야 한다. 따라서 촉매는 높은 활성은 물론이고, 낮은 압력강하 및 높은 열전달 특성을 필요로 한다. 열전달 현상이 향상되면 리포밍시스템의 높은 효율이 가능해진다. 본 연구에서는 금속모노리스에 활성금속을 코팅하여 열전달 특성이 향상되고 압력강하가 거의 없는 촉매를 개발하여 촉매부분산화반응기와 수증기개질반응기에 각각 적용하였다.

2. 실험

금속모노리스는 50 μ m 두께의 Fecralloy(GoodFellow사) 금속판을 물결무늬로 만든 판과 평평한 판을 겹치게 하여 감아서 사용하였고 셀 밀도는 약 640cpi이었다. 세라믹 washcoat 물질과 금속과의 접착 강도를 향상하기 위해 제조된 금속 지지체는 고온에서 미리 표면을 산화시켜서 사용하였다. 부분산화반응용 촉매로 팔라듐(Pd)이 상용되었고, 금속지지체에 washcoat한 형태로 제조되었다. 알루미늄과 특정 조촉매의 혼합물 분말을 고농도로 슬러리화한 용액에 적당량의 Pd nitrate를 용해하고, 이 용액에 미리 준비한 금속지지체를 여러 번 담갔다 건조한 후, 900°C까지 소성하여 촉매를 제조하였다.

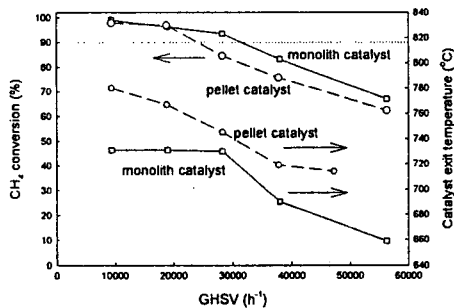
수증기개질촉매는 상용 Ni/alumina 촉매를 미세분말로 만들어 금속모노리스에 washcoat한 형태로 사용하였다. 제조된 단위 촉매는 원통형으로 스테인리스 스틸 재질의 반응기에 충전하여 사용하였다. 리포밍반응의 반응물로 메탄과 공기 또는 수증기를 사용하였고, 질량조절기(Brooks, 5850E) 및 액체펌프에 의해 각각의 유량을 조절하였다.

3. 결과

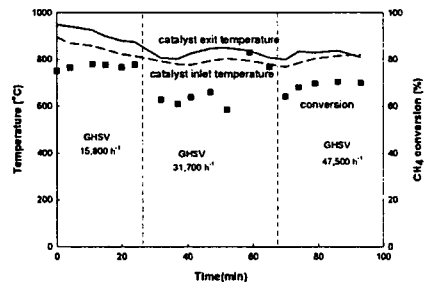
Pd이 washcoat된 금속모노리스 촉매를 장착한 반응기와 열교환기를 이용하

여 상온의 반응물(공기+메탄)을 예열하여 부분산화반응을 수행한 결과, 높은 유속(GHSV 100,000h⁻¹)에서 메탄전환율은 96.7%, 수소선택도는 98.3%를 얻을 수 있었다. 이 때 촉매에 의한 압력강하는 0.07기압 이하였다. 금속모노리스 촉매를 부분산화반응에 사용하면, 촉매 전체의 온도가 균일하게 유지되어 높은 전환율을 얻을 수 있다. 촉매 일부분의 온도가 낮으면, 그 곳을 통과하는 반응물의 전환이 충분하지 않아서 높은 전환율이 불가능하다.

상용 Ni/alumina 촉매를 금속모노리스에 washcoat한 촉매와 3-5mm 크기의 Ni pellet 촉매를 같은 용적(12cc) 충전하고 공간속도를 변화하면서 수증기개질 반응을 수행한 결과를 [그림 1]에 나타내었다. 금속모노리스-Ni 촉매는 pellet형 촉매에 비해 더 높은 공간속도에서 높은 메탄전환율을 보였다. 일반적인 수증기개질반응기의 공간속도는 5,000-8,000 h⁻¹인데 비하여, Ni-모노리스 촉매는 28,000 h⁻¹의 높은 공간속도에서 90% 이상의 높은 메탄전환율을 가능하게 하였다. 금속모노리스 촉매의 높은 수증기개질반응 성능은 금속모노리스의 높은 열전도도로 인하여 반응열의 전달이 용이하기 때문이다. 금속모노리스-Ni 촉매의 우수한 열전달 특성을 활용하기 위해 Shell-and-tube-type 열교환형 반응기에 이들 촉매를 충전하고 shell 측에 고온의 배가스를 주입하여 수증기개질반응을 수행한 결과, 47,500 h⁻¹의 높은 공간속도에서 약 70%의 메탄전환율과 낮은 압력저하를 보여, 금속모노리스 촉매의 수증기개질 리포머 촉매로서의 적합성을 입증하였다.



[그림 2] Pellet형 Ni 촉매와 금속모노리스에 washcoat된 Ni 촉매의 공간속도 변화에 따른 수증기개질 성능 비교.



[그림 3] Ni가 코팅된 금속모노리스 촉매 35 cc가 충전된 열교환형 수증기개질반응기 운전 결과.

4. 결론

열전달 특성이 향상된 금속모노리스 촉매는 발열반응인 부분산화반응과 흡열반응인 수증기개질반응 모두 균일한 촉매 온도 유지와 반응열의 용이한 공급의 장점을 각각 제공하여 고성능 리포머의 소형화를 가능하게 하였다.