

# Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 코팅된 니켈폼을 이용한 수소-공기 예혼합 기체의 촉매 연소

진정근\* · 권세진\*\*†

## Catalytic combustion of H<sub>2</sub>/Air mixture using Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> coated nickel foam

Jung Kun Jin and Sejin Kwon

### ABSTRACT

A nickel foam, one of metal foams was selected as a catalyst support instead of conventional ceramic materials. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> was coated on the surface of nickel foam to increase the surface area. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> coating process was based on sol-gel process. SEM image was obtained and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> coverage was confirmed.

Combustion experiments were carried out using SUS combustor and H<sub>2</sub>/air mixture. Temperatures were measured with different equivalence ratios and H<sub>2</sub> flow rates. H<sub>2</sub> conversion rates were calculated by the analysis of product gas using gas chromatography. Catalytic combustion of H<sub>2</sub> was complete and stable with Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> coated nickel foam and influences of water vapor were confirmed during the beginning of combustion.

**Key Words** : Hydrogen catalytic combustion, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> washcoating, Nickel foam support, Micro catalytic combustor

### 기 호 설 명

AIP	Aluminum Isoporporxide	GC	Gas Chromatography
SEM	Scanning Electron Microscope	DAQ	Data Acquisition
MFC	Mass Flow Controller	ccm	cc per minute

### 1. 서 론

촉매 연소는 다양한 응용 분야에서 화염 연소의 대안으로 주목받아왔다. 가스 터빈에서는 NO<sub>x</sub> 방출을 줄이기 위해 촉매 연소를 적용하는 연구가 이루어지고 있다[1-2]. 화염 연소의 경우 1500℃ 이상의 온도장이 형성되고 공기 중의 질소와 산소가 반응하여 thermal NO<sub>x</sub>가 발생하게

된다. thermal NO<sub>x</sub>를 줄이기 위해서 반응 온도를 낮추어야 하며 이를 위해 공기를 과도하게 혼합하는 희박 연소를 적용하고 있다. 그러나 이 경우 CO와 연소되지 않은 탄화수소계 기체 분자의 양이 증가한다는 단점이 있다[2]. 촉매 연소는 thermal NO<sub>x</sub>가 발생하지 않을 정도로 낮은 온도에서도 반응이 일어나며 희박 연소의 경우에도 안정적인 연소 반응을 유지할 수 있다는 장점이 있어 가스 터빈에 적용하기 위한 많은 연구가 수행되고 있다.

마이크로 촉매 연소기는 초소형 동력 생산 장치의 주요 요소로서 연구가 활발하게 이루어지고 있다[3-6]. 최근 미세 가공 기술이 발달함에 따라

\* 한국과학기술원 항공우주공학과 대학원

† 연락처, turmpet@kaist.ac.kr

\*\* 한국과학기술원 항공우주공학과

다양한 마이크로 시스템이 개발되고 있다. 이러한 마이크로 시스템들은 그 크기가 감소하고 기능은 증가함에 따라 높은 에너지 밀도의 동력원을 요구하고 있다. 그러나 현재 널리 사용되고 있는 배터리는 에너지 밀도가 그 요구에 미치지 못하고, 고출력을 발생하거나 고온이 필요한 마이크로 장치에 적용할 경우 동력원의 크기가 시스템에 비해 커지는 문제가 발생한다. 화학 연료의 연소를 이용한 동력 장치는 일반적인 배터리에 비하여 수 배~수십 배의 에너지 밀도를 구현할 수 있으며 마이크로 연소기는 이러한 동력 시스템의 열원으로 사용된다.

마이크로 연소기 개발에 있어 촉매 연소는 화염 연소에 비해 좁은 공간에서도 소염이나 화염 불안정성이 없어 안정적인 반응을 유지할 수 있으며, 활성화 에너지가 작아서 반응이 쉽게 발생한다는 장점이 있다. 또한 화염 연소에 비해 상대적으로 저온에서도 반응이 잘 일어나기 때문에 외부로의 열손실이 적다. 마이크로 스케일의 연소 챔버에서 화염 연소 반응이 발생할 경우 외부로의 과도한 열손실이나 화염과 표면의 상호작용으로 인한 소염이 일어나게 되는데[7], 촉매 연소는 이러한 문제를 해결할 수 있어 마이크로 연소기에 적합한 연소 반응으로 주목받고 있다.

촉매 담지 및 코팅은 촉매 연소기 개발에 있어 중요한 역할을 한다. 일반적으로 촉매 연소에는 백금(Pt), 팔라듐(Pd)과 같은 귀금속 물질이 사용된다. 촉매 연소에서는 귀금속 촉매 물질을 표면적이 넓은 다공성 지지체의 표면에 코팅하여 사용한다. 다공성 지지체로는 허니컴 모노리스와 같은 세라믹 물질이 많이 사용되고 있다[8]. 허니컴 모노리스를 사용하는 경우 표면에  $Al_2O_3$ 를 코팅하여 표면적을 더욱 증가시켜 사용하기도 한다. 마이크로 연소기의 경우 연소 챔버의 크기가 작기 때문에 기존의 세라믹 물질을 사용하는 대신 미세 가공 기술을 이용하여 채널이나 기둥을 형성한 후 그 표면에  $Al_2O_3$ 와 같은 세라믹 물질을 코팅하여 지지체를 형성한다.

세라믹 지지체는 열적 안정성이 우수하고 세공이 발달하여 표면적이 넓다는 장점으로 인해 촉매 연소의 지지체로 사용되고 있으나 다음과 같은 문제점을 가지고 있다. 첫째, 낮은 열전도도 인하여 반응이 국부적으로 발생하는 경우 열점(hot spot)이 발생하며 연소기 구조물을 파손시키는 문제를 발생시킨다. 둘째로, 세라믹 지지체를 마이크로 연소기에 적용하는 경우 세라믹 가공의 한계로 인해 그 크기가 제한되며 작은 크기로 가공하는 경우 쉽게 파손되어 사용하기가 어렵다[8].

이러한 문제를 해결하기 위해 이 연구에서는 기존의 세라믹 지지체의 대안으로 발포 금속

(metal foam)의 일종인 니켈폼을 제안하고자 한다. 니켈폼은 세라믹 물질에 비해 상대적으로 열전도도가 높고 압착, 가공이 용이하기 때문에 마이크로 연소기의 지지체로서 적합하다.

이 연구에서는 니켈폼을 지지체로 하여 백금 촉매를 코팅하기 위한 연구를 수행하였으며, 이를 통해 촉매 연소 반응 시험을 위한 시편을 제작하였다. 제작한 시편은 시험용 연소기를 제작하여 삽입하고 수소, 공기 예혼합 기체를 공급하여 촉매 연소 시험을 수행하고 반응성을 확인하였다.

## 2. Pt/ $Al_2O_3$ 를 코팅한 니켈폼 제작

### 2.1 $Al_2O_3$ washcoating

니켈폼은 그 자체가 다공성 지지체이기 때문에 표면적이 넓은 편이지만 세공의 직경이 수백  $\mu m$ 으로 다른 세라믹 지지체에 비해 크고 표면적은 상대적으로 좁다. 이 연구에서는 니켈폼의 표면적을 증가시키기 위하여 표면에 다공성 세라믹 물질인  $Al_2O_3$ 를 코팅하였다.  $Al_2O_3$  워시코팅(washcoating) 공정은 ①용액의 합성과 ②코팅 및 열처리 두 단계로 구성된다.

#### 2.1.1 워시코트(washcoat) 용액 합성

워시코트 용액의 준비 과정은 크게 졸-겔(sol-gel)법을 이용한 알루미늄 수산화물(aluminum hydroxide)이 분산된 졸(sol)을 합성하는 단계와 이를 이용해 코팅 슬러리를 제작하는 두 단계로 구성된다.

$Al_2O_3$  졸-겔법은 금속 알콕사이드로부터 알루미늄 수산화물이 잘 분산된 현탁액(suspension)을 얻어  $Al_2O_3$ 를 합성하는 방법이다[9]. 이 현탁액을 졸이라하며 졸의 열처리를 통해  $Al_2O_3$ 를 얻을 수 있다.

이 연구에서 수행한 졸-겔 공정은 다음과 같다. 먼저  $85^\circ C$ 로 가열한 100 몰의 물에 1 몰의 알루미늄 이소프로폭사이드(AIP,  $Al(OC_3H_7)_3$ , Sigma Aldrich 98%+)를 첨가하고 300rpm으로 교반하며 가수분해 반응을 유지한다. 이때 PVA(Poly-Vinyl Alcohol, Sigma Aldrich)를 첨가한다. PVA는 고분자 물질로 용액의 점성을 증가시키며 코팅 후 열처리 과정에서 건조 속도를 감소시키는 역할을 한다. 건조 속도가 빠른 경우 코팅된 막의 균열이 발생한다[10,11].

AIP의 가수분해에 의해 알루미늄 수산화물이 형성되어 용액이 불투명해지고 수산화물 입자의 침전이 발생하게 된다. 이때 입자를 해교(peptization)하기 위해 0.07몰의 질산(Junsei,

60%)을 첨가한다. 일정시간 후에는 불투명한 용액이 투명하게 되는데 질산에 의해 입자가 해고되어 그 크기가 1 $\mu$ m이하로 감소하였기 때문이다. 투명한 용액은 상온으로 서냉한다.

이상의 과정을 통해 얻은 졸의 경우 알루미늄 수산화물의 농도가 질량으로 2-3% 내외를 보이며, 졸의 대부분은 물과 알코올이 차지한다. 따라서 졸을 코팅에 직접 이용하는 경우 질량과 부피의 감소로 인해 1 $\mu$ m 이상의 코팅막을 얻기 어렵고 열처리 과정에서 쉽게 파손된다는 단점이 있다[12,13].

코팅 슬러리(slurry)는 서냉한 졸에 물과 상용 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 분말을 첨가하여 준비한다. 이 연구에서는  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(Alfa Aesar, BET 표면적 : 80-100m<sup>2</sup>/g) 분말을 사용하였으며 최종적으로 합성된 슬러리에서 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 농도는 15wt%가 되도록 하였다. 혼합 용액에는 일정량의 질산을 첨가하여 입자의 침전이 일어나지 않도록 pH가 3.8-4 사이의 값을 가지도록 하였다. 최종적으로 슬러리 내의 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 입자를 볼-밀(ball-mill)을 이용하여 290rpm으로 96시간 동안 분쇄하였다.

을 하지 않은 니켈폼의 표면은 매끈하고 니켈폼의 결정립계(grain boundary)가 나타났다. 그러나 위시코팅 된 시편의 표면에서는 결정립계가 확인되지 않고 시편의 표면이 거칠게 형성되어 있음을 확인할 수 있다. 이를 통해 앞서 언급한 공정을 통해 니켈폼 표면에 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 코팅할 수 있음을 확인할 수 있으며 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>에 의해 표면적이 증가함을 확인하였다.

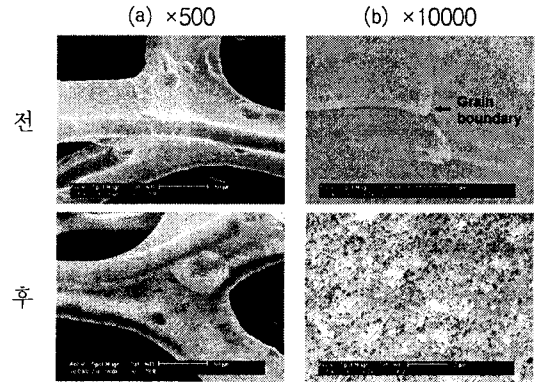


Fig. 1 니켈폼 표면의 SEM 사진(위시코팅 전/후)

2.1.2 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 코팅 및 열처리

Table 1은 연구에서 사용한 니켈폼의 사진과 특성으로 코팅 및 연소 시험을 위해 20(L)×10(W) mm 크기로 가공하였다.

	Porosity	90-92%
	두께	1 mm
	평균 세공 지름	200 $\mu$ m

Table 1 니켈폼의 특성

가공된 니켈폼을 준비된 코팅 용액에 침전시켜 코팅 용액을 충분히 흡수 시킨다. 니켈폼 세공 안에 있는 과도한 코팅 용액은 압축 질소를 이용하여 제거하고 100 $^{\circ}$ C의 대류 오븐에서 건조시킨다. 건조 후 질량을 측정하여 코팅된 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 양을 측정하고 원하는 질량이 코팅될 때까지 이상의 과정을 반복한다. 이 연구에서는 백금 촉매 코팅 및 연소 시험을 위해 니켈폼 질량에 대하여 30-40wt%의 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 코팅된 시편을 준비하였다. 코팅, 건조 공정을 마친 시편은 500 $^{\circ}$ C의 전기로에서 12시간 동안 하소(calcination)하여 유기물을 제거하였다.

Figure 1은 위시코팅 전후의 니켈폼 표면의 SEM 사진으로 배율을 달리하여 촬영하였다. 500배의 배율에서는 코팅 전후의 표면에 큰 차이가 나타나지 않았으나 10000배로 확대하였을 때 표면의 뚜렷한 차이가 나타났다. 먼저 위시코팅

2.1.3 백금 담지

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 코팅한 니켈폼에 대하여 백금 담지를 수행하였다. 염화백금산(H<sub>2</sub>PtCl<sub>6</sub>)를 전구체로 하여 합침법을 이용하여 코팅하였다. 용제로는 아세톤을 사용하였다. 코팅된 시편은 500 $^{\circ}$ C에서 하소한 후, 4% H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>를 공급하여 500 $^{\circ}$ C에서 5시간 동안 환원(reduction)하였다.

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 코팅된 시편을 사용하기에 앞서 동일한 방법을 이용하여 위시코팅을 하지 않은 시편의 백금 담지 실험을 수행하였다(Figure 2). 이 경우 니켈폼이 그림에서와 같이 부식되어 쉽게 파손되었다. 따라서 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 코팅함으로써 표면적을 증가시키고 동시에 강산인 염화백금산으로부터 니켈을 보호하는 효과를 얻을 수 있음을 확인할 수 있다.



Fig. 2 순수 니켈폼을 이용한 백금 담지 결과

이 연구에서는 백금이 전체 질량에 비하여 10-20 wt%가 되도록 백금양을 조절하였으며 실제 제작된 촉매 시편의 특성을 Table 2에 제시하였다.

	니켈폼	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Pt
질량(mg)	108	36	23

Table 2 제작된 시편의 특성

### 3. 실험 장치 및 실험 조건

#### 3.1 시편 시험용 연소기

제작된 촉매 시편을 이용한 연소 시험을 위해 시험 연소기를 제작하였다. 연소기는 SUS 304를 이용하여 제작하였으며 20(L)×10(W)×1(H) mm 크기의 연소 챔버를 가지도록 설계하였다. 선행 연구에서 연소기의 외적이 큰 경우 연소기 자체의 열용량이 커서 연소기의 온도가 올라가지 않기 때문에 연소기의 온도가 충분히 증가할 수 있도록 설계하였다[13]. 또한 연소 생성물인 물이 연소기를 빠져나간 후 응축되어 연소기로 역류하는 것을 막기 위해 입구와 출구의 흐름이 연소기 내부의 유동 흐름 방향과 평행하게 설계하였다. 연소기 내부의 온도 측정을 위해 연소기 상부 중심에 열전대를 삽입하였다(Figure 3).

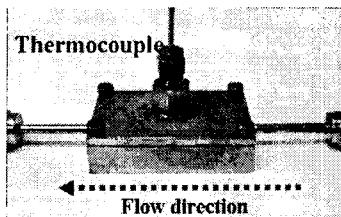


Fig. 3 시편 시험용 연소기

#### 3.2 실험 장치 구성

전체 실험 장치의 개략도를 figure 4에 제시하였다. 수소와 공기는 MFC를 이용하여 유량을 조절하였으며 각 기체를 혼합 챔버에 공급하였다. 혼합 챔버를 빠져나온 혼합 기체를 연소기에 공급하기에 앞서 GC (ACME 6000, 영린기기)를 이용하여 조성을 분석하였다. 분석 컬럼으로는 산소와 질소를 분리할 수 있는 Molesieve 13X (RESTEK Co.)을 사용하였다.

촉매 연소 반응의 생성물 분석 역시 GC를 이용하여 수행하였으며 생성된 기체의 수분을 제거하기 위해 반응 후 기체가 실리카겔(silica gel)을 통과하도록 하였다. 수증기는 컬럼의 분석의 정확도를 떨어뜨리며 컬럼의 파손을 가져올 수 있다.

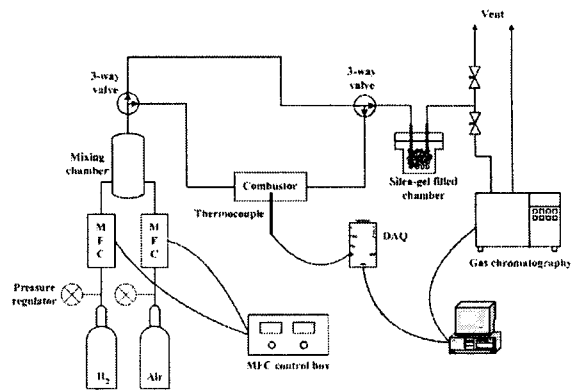


Fig. 4 실험 장치 구성

#### 3.2 실험 조건

수소 촉매 연소 실험은 5 cm 두께의 단열체를 이용하여 외부로의 열손실을 막은 상태에서 수행하였다.

실험에서는 수소-공기 혼합 기체의 유량과 당량비를 달리하여 시간에 따른 온도 변화와 전환을 변화를 측정하였다. 당량비는 1, 0.5, 0.25, 0.1에 대하여, 유량은 수소 유량을 기준으로 30, 40, 70, 100 ccm을 공급하였다. 실험은 각 조건에 대하여 120분씩 수행하였다. 온도는 DAQ 시스템을 이용하여 기록하였으며 전환을 역시 실험 과정에서 지속적으로 측정하였다. 실험에서 사용한 기체의 공급 유량과 조성을 Table 3에 제시하였다. 수소 유량이 100 ccm인 경우 연소기의 온도가 급격히 증가하기 때문에 수소의 자연발화를 막기 위해 90분 동안 실험을 수행하였다.

Table 3 수소, 공기 공급 유량 및 조성

당량비	수소농도 (Vol%)	수소(ccm)	공기(ccm)
1	29.5%	30	72
		40	96
		70	167
		100	238
0.5	17.3%	30	143
		40	191
		70	334
0.25	9.5%	100	476
		30	286
		40	381
0.1	4.0%	70	667
		100	952
		30	714
		40	953

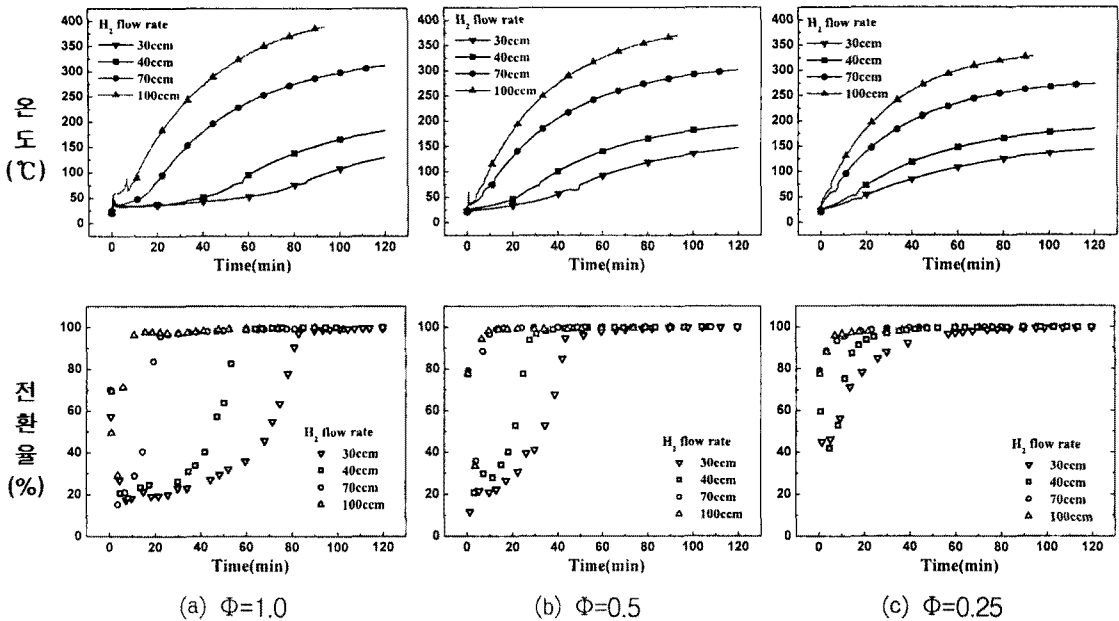


Fig. 5 시간에 따른 온도 및 전환율 변화 (유량 및 당량비( $\Phi$ ) 변화)

#### 4. 결과 및 고찰

##### 4.1 시간에 따른 온도 및 전환율 변화

Figure 5는 시간에 따른 온도와 전환율 변화를 측정된 결과로 각 그래프는 주어진 당량비에 대하여 수소 유량을 달리하여 얻어진 데이터를 보여주고 있다. 모든 당량비 조건에 대하여 연소 반응이 발생하고 연소기의 온도가 시간에 따라 증가함을 확인할 수 있다. 또한 모든 당량비에 대하여 수소 유량이 증가함에 따라 연소기의 온도가 증가함을 확인할 수 있다.

Figure 5(a)의 모든 유량 조건과 5(b)의 수소 유량이 70, 100 ccm 인 경우 초반에 급격히 온도가 증가한 후 급격히 감소하는 시간 구간이 존재함을 확인할 수 있다. 이러한 현상은 수소 농도가 상대적으로 높고( $\Phi=1.0, 0.5$ ), 유량이 많은 조건에서만 나타났는데 이는 반응 초반 고농도의 수소가 고유량으로 유입됨에 따라 반응열이 증가하여 순간적으로 많은 열이 생성되었기 때문이다. 그러나 반응 초기의 연소기 외벽의 온도는 상온이므로 이때 생성된 열이 연소기에 의해 흡수되어 온도가 감소되고 반응열이 급격히 감소하는 것으로 보인다. 이후 같은 농도와 유량의 혼합기체가 유입되지만 다시 반응열이 급격히 증가하지 못하는 것은 초기의 급격한 반응에서 발생한 수증기 중 일부가 연소기를 미처 빠져나가지 못하고 온도 감소에 따라 응축하여 촉매 활성점을 덮고, 이로 인해 반응성이 저하되기 때문으로

보인다. 시간에 따른 전환율 측정 결과에 따르면 이러한 피크가 나타나는 시간대에 전환율은 급격히 증가한 후 다시 급격히 감소함을 확인할 수 있다.

Figure 5의 온도 그래프에 따르면 온도는 유량 변화에 따른 경향이 당량비가 다른 경우에도 유사함을 확인할 수 있다. 그러나 전환율은 당량비가 달라짐에 따라 유량 변화에 따른 경향은 다르게 나타났다.

당량비가 1인 혼합 기체의 경우 유량에 따라 전환율이 변하는 시간 구간이 큰 차이를 보인다(Figure 5(a)). 유량이 증가함에 따라 전환율이 정상 상태가 되는 시점이 상대적으로 빨리 나타났으며 유량에 따른 시간 차이가 크게 나타났다. 당량비가 0.5인 경우에는 상대적으로 그 차이가 감소하였으며 수소 유량이 70 ccm, 100 ccm인 경우 시간에 따라 유사한 경향을 보였다(Figure 5(b)). 당량비가 0.25인 실험 결과 역시 유량에 따른 차이가 감소하였다. 그러나 낮은 수소 유량(30, 40 ccm)에 대하여 전환율이 정상 상태에 도달하는 시간 영역에서 다른 당량비 조건에 비하여 상대적으로 완만함을 확인할 수 있다.

Figure 6은 당량비가 0.1로 수소 농도가 낮은 혼합기체의 연소 실험 결과이다. 부피 농도로 4%의 수소가 공급되었으며 수소/공기 혼합기체의 가연 범위가 4-75%임을 고려하면 연소 가능한 가장 낮은 농도에 해당한다. 실험에서 사용한 두 유량 조건에 대하여 모두 연소 반응이 안정적으로 발생하였으며 40 ccm의 수소 유량에 대해

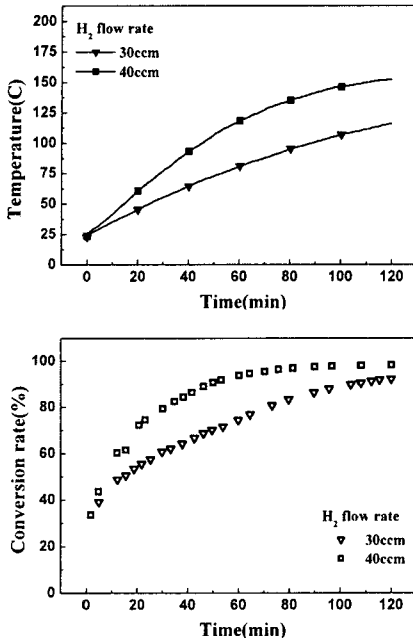


Fig. 6 시간에 따른 전환율 및 온도 변화( $\Phi=0.1$ )

여 실험 시작 후 두 시간 후 98% 이상의 전환율이 측정되었다. 30 ccm의 수소를 공급한 실험에서는 전환율이 92% 정도로 측정되었다. 그러나 40 ccm의 실험 결과에 비해 전환율이 정상상태의 결과를 보이지 않았기 때문에 반응을 지속시키면 실제 최종 전환율은 이보다 높을 것이다.

4.2 당량비 변화에 따른 연소 특성

Figure 7은 수소 유량이 30 ccm일 때, 공기 유량이 달라짐에 따라(당량비 변화) 시간에 따른 온도와 전환율이 변화를 비교하고 있다. 실험 시작 후 급격한 반응이 일어나는 영역을 제외하면 반응 초기에 온도는 당량비가 0.25인 유동의 온도가 가장 높았으나 2시간 후에는 당량비가 0.5인 경우의 온도가 가장 높았다. 또한 당량비 1.0인 실험과 비교하면 온도 차이가 모두 감소하고 있음을 확인할 수 있다. 당량비가 1.0일 때는 당량비가 0.1인 실험보다 실험 초반부터 100분간은 온도가 낮지만 100분이 지난 후부터 온도가 높아진다. 이후 온도 차이는 시간이 갈수록 증가함을 확인할 수 있다. 이러한 온도의 차이는 전환율 측정 결과로부터 확인할 수 있다. 반응 초기 전환율은 당량비가 0.25인 경우에 가장 높다. 같은 양의 수소가 공급되었으므로 전환율이 높다는 것은 그만큼 많은 양의 열이 발생한다는 것을 의미한다. 따라서 반응 초기의 온도는 0.25의 경우에 가장 높다. 그러나 40분 정도 후에는 당량비 0.5 실험에서 전환율이 급격하게 증가하여 0.25와 일치하기 시작하며 이후 60분 정도의 시간이 더 흐른 후에는 0.25의 온도를 넘어가게 된다.

당량비가 1.0인 경우에는 전환율의 급격한 증가가 시간이 좀 더 흐른 뒤에 나타나게 된다. 따라서 실험이 더욱 지속되면 최종적으로 당량비가 1.0인 실험의 온도가 가장 높을 것으로 예상된다.

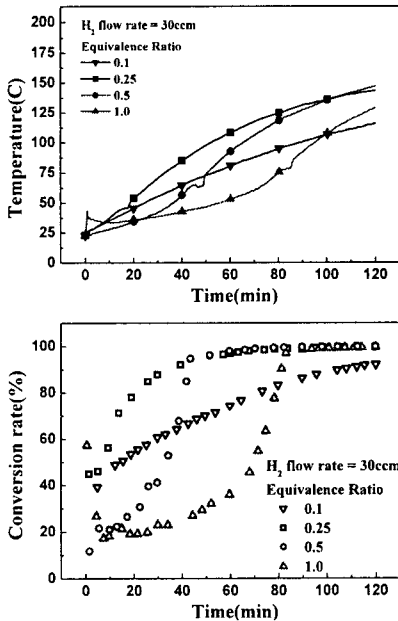


Fig. 7 전환율 및 온도 변화( $h_2=30\text{ccm}$ )

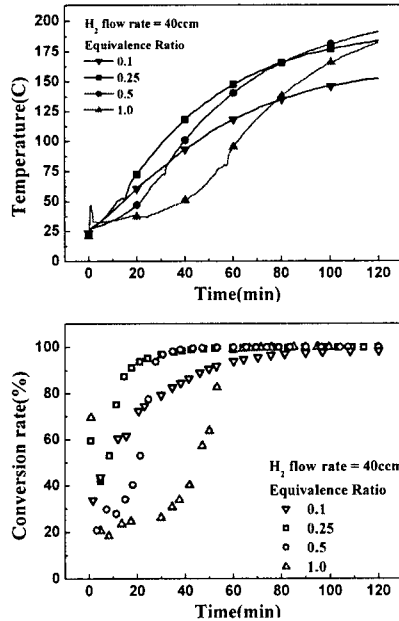


Fig. 8 전환율 및 온도 변화( $h_2=40\text{ccm}$ )

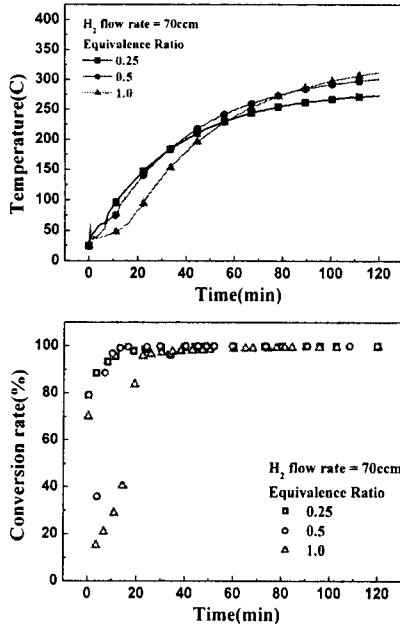
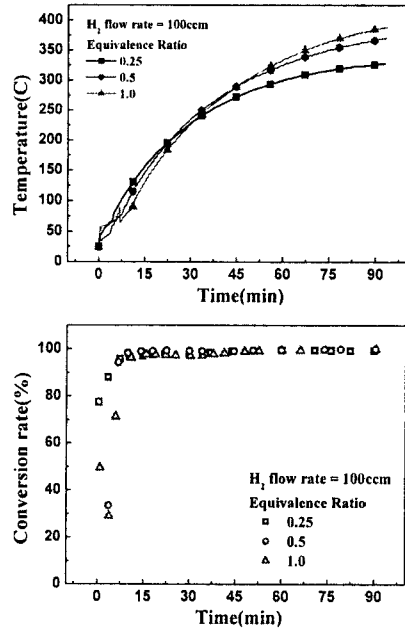
Fig. 9 전환율 및 온도 변화( $h_2=70\text{ccm}$ )

Figure 8은 수소 유량이 40ccm일 때의 실험 결과로 전체적으로 Figure 7과 유사한 형상을 보이고 있다. 그러나 온도 경향의 역전이 일어나는 시점과 전환율이 급격히 상승하는 시점이 상대적으로 빨리 나타남을 확인할 수 있다.

Figure 9는 수소 유량을 70 ccm으로 증가시켜 얻은 실험 결과이다. MFC의 유량 한계로 인하여 당량비 0.1의 실험은 수행하지 못하였다. 반응 초반에는 앞선 실험 결과와 마찬가지로 당량비가 낮을수록 온도가 높았으나 그 차이는 이전 실험에 비해 감소하였다. 또한 당량비 0.5의 온도 그래프가 0.25의 그래프를 추월하는데 걸린 시간도 훨씬 단축되었다. 특히 이전 실험과는 달리 당량비 1.0의 온도 그래프가 실험 두 시간 안에 0.25와 0.5의 그래프를 추월하는 것을 확인할 수 있다. 따라서 최종적으로 두 시간 후 온도를 보면 초기와는 달리 당량비가 클수록 온도가 높은 것을 확인할 수 있다. 전환율은 당량비 0.5와 0.25의 실험 결과가 시간에 따라 유사한 결과를 나타냈으며 1.0인 경우에도 이전 실험과는 달리 두 그래프에 많이 근접했음을 확인할 수 있다.

Figure 10은 수소 유량이 100 ccm인 실험 결과이다. 각 온도 그래프 간의 교차점이 Figure 9에 비해 이른 시간에 나타남을 확인할 수 있다. 전환율 역시 세 당량비 조건에 대하여 그 변화가 유사함을 확인할 수 있다. Figure 10과 7을 비교하면 당량비 변화에 따른 특성이 확연히 다를 수 있다. 이를 통해 과도영역(transient period)에서 온도와 전환율에 대한 당량비의 영향

Fig. 10 전환율 및 온도 변화( $h_2=100\text{ccm}$ )

향은 유입되는 유량에 따라 다르게 나타남을 확인할 수 있다.

### 4.3 당량비의 영향이 유량에 따라 다르게 나타나는 원인

4.2절에서 당량비의 영향이 유량에 따라 다르게 나타난 원인으로 발열량과 연소기의 열용량 그리고 연소기 내부로 유입되는 건조 기체의 양을 들 수 있다.

그래프에서 온도 및 전환율의 차이는 주로 반응 초반에 발생한다. 특히 전환율이 급격히 증가하는 시점의 온도는 모든 조건에 대하여 100°C 미만임을 확인할 수 있다.

수소 유량이 적은 경우 초반에 발생할 수 있는 열이 적어 온도 증가 속도가 늦다. 따라서 생성물인 물이 수증기의 형태로 존재하게 되며 일부는 응축하여 연소기 내부에 남는다. 이때 당량비가 낮으면 반응에 참여하지 않는 질소나 산소의 양이 많다. 이 건조 기체들에 의해 수증기가 증발하여 외부로 연소기 외부로 방출되며 당량비가 낮을수록 내부에 수증기가 상대적으로 적게 남게 된다. 연소기 내부에 남아있는 수증기는 저온영역에서 촉매 활성점을 덮고 이로 인해 반응성이 떨어지게 된다. 이러한 과정이 반복되어 온도 상승이 더디게 되고 전환율 역시 낮게 나타난다(Figure 7).

같은 연소기에서 유량이 증가하면 초반에 훨씬 많은 열이 발생한다. 이는 연소기 내부 온도

를 상대적으로 고온으로 만들게 되며 생성물이 물에 의한 반응성 저하는 상대적으로 약해지게 된다. 이러한 원인으로 수소 유량이 증가함에 따라 온도 그래프의 교차점과 전환율이 급격히 올라가는 지점이 일찍 나타나는 것으로 보인다(Figure 7-9).

수소 유량이 더욱 증가하면 연소기의 온도가 초반에 급격히 증가하게 된다. 이 경우에는 온도 증가로 인해 연소기 내부에 수증기가 남을 수 없게 되고 연소기에서 배출되는 질소와 여분의 산소는 오히려 발생 열을 흡수하여 연소기로 전달되는 열량이 감소하게 된다. 따라서 이 경우에는 당량비가 1에 근접할수록 연소기 내부 온도가 높게 나타난다(Figure 9, 10).

## 5. 결론 및 향후 계획

이 연구에서는 촉매 연소를 위하여 기존의 세라믹 지지체를 대신 금속 지지체인 니켈폼을 사용하였으며 니켈폼에 대한  $Al_2O_3$  위시코팅 및 백금 담지 공정을 확립하였다.

확립한 공정을 이용하여  $20 \times 10 \times 1$ mm 크기의 시편을 제작하고 수소-공기 예혼합 기체를 공급하여 촉매 연소 반응의 가능성 및 그 특성을 확인하였으며, 특히 수소 유량과 당량비가 온도와 전환율의 과도 변화에 미치는 영향에 대하여 실험을 통해 확인하였다.

이 연구에서는 소형 혹은 초소형 연소기에 적합한 범위의 유량으로 실험을 수행하였으며, 촉매 시편의 크기 역시 이에 적합하게 제작하였다. 따라서 이 연구에서 제시한 공정 및 특성을 바탕으로 초소형 촉매 연소기를 제작하는데 직접적으로 사용할 수 있을 것으로 기대한다.

향후에는 MEMS 가공 공정을 이용하여 연소기를 제작하고 이 연구에서 확립한 공정을 통해 촉매 시편을 제작하여 실제 마이크로 촉매 연소기를 제작하고 실험을 수행할 예정이다.

## 후 기

이 연구는 연소기술 연구센터(CERC)의 지원을 받아 수행하였으며 이에 감사의 뜻을 전합니다.

## 참고문헌

[1] Koichi Eguchi and Hiromichi Arai, "Recent advances in high temperature catalytic combustion," *Catalysis Today*, Vol. 29, 1996, pp. 379-386  
 [2] W. J. Kuper, M. Blaauw, F. van der Berg and G. H. Graaf, "Catalytic combustion concept

for gas turbines," *Catalysis Today*, Vol. 47, 1999, pp. 377-389

[3] C. M. Spadaccini, Xin Zhang, C. P. Cadou, Norihisa Miki and Ian A. Waitz, "Preliminary development of a hydrocarbon-fueled catalytic micro-combustor," *Sensor and Actuator A*, Vol. 103, 2003, pp. 219-224

[4] Yuji Suzuki, Yuya Hori and Nobuhide Kasagi, "Micro catalytic combustor with tailored Pt/ $Al_2O_3$  films," *Power MEMS 2003*, Makuhari, Japan, pp. 23-26

[5] J. Vican, B. F. Gajdecko, F. L. Dryer, D. L. Milius, I. A. Aksay and R. A. Yetter, "Development of a microreactor as a thermal source for microelectromechanical systems power generation," *Proceeding in Combustion Institute*, Vol. 29, 2002, pp. 909-916

[6] Shin-Kun Ryi, Jong-Soo Park, Seung-Hoon Choi, Sung-Ho Cho and Sung-Hyun Kim, "Novel micro fuel processor for PEMFCs with heat generation by catalytic combustion," *Chemical Engineering Journal*, Vol. 113, 2005, pp. 47-53

[7] Kyu Tae Kim, Dae Hoon Lee and Sejin Kwon, "Effects of thermal and chemical surface-flame interaction on flame quenching," *Combustion and Flame*, 2006, Vol. 146, pp. 19-28

[8] Wonyoung Choi, "Combustion characteristics of premixed hydrogen-air in micro scale catalytic combustors", M.S. Thesis, 2005, KAIST

[9] Bulent E. Yoldas, "Alumina Sol Preparation from Alkoxide," *Ceramic Bulletin*, Vol. 54, No. 3, 1975, pp. 289-290

[10] Sujit Srinivas, Amit Dhingra, Hong Im and Erdogan Gulari, "A scalable silicon microreactor for preferential CO oxidation," *Applied Catalyst A*, Vol. 274, 2004, pp. 285-293

[11] Christos Agrafiotis and Athena Tsetsekou, "Deposition of meso-porous  $\gamma$ -alumina coatings on ceramic honeycombs by sol-gel methods," *Journal of European Ceramic Society*, Vol. 22, 2002, pp. 423-434

[12] K. Haas-Santos, M. Fichtner and K. Schubert, "Preparation of microstructure compatible porous supports by sol-gel synthesis for catalyst coating," *Applied Catalyst A*, Vol. 220, 2001, pp. 79-92

[13] 진정근, 김충기, 권세진, "초소형 연소기를 위한 촉매 합성, 담지 방법 및 담지체," 제33회 한국연소학회, 제주, 2006, pp. 235-241