

# 고분자 전해질 연료전지용 마이크로 개질기 개발

\*정창렬<sup>1</sup>, 장재혁<sup>1</sup>, 이홍렬<sup>1</sup>, Arunabha Kundu<sup>1</sup>, 김재형<sup>1</sup>, 김성한<sup>1</sup>, 차혜연<sup>1</sup>  
<sup>1</sup> 삼성전기 (주) 중앙연구소

## Development of Micro-Reformer for Polymer Electrolyte Fuel Cell

\*C. R. Jung<sup>1</sup>, J. H. Jang<sup>1</sup>, H. R. Lee<sup>1</sup>, Arunabha Kundu<sup>1</sup>, J. H. Gil<sup>1</sup>, S. H. Kim<sup>1</sup>, H. Y. Cha<sup>1</sup>  
<sup>1</sup> Corporate R&D Institute, Samsung Electro-Mechanics

Key words : micro-reformer, fuel processor, methanol reforming, hydrogen, PEMFC

### 1. 서론

최근 환경 문제에 관한 관심이 고조되면서 새로운 에너지원으로 연료전지를 이용하려는 시도가 활발히 진행되고 있다. 또한 지상과 DMB폰을 비롯한 휴대용 전원을 이용한 인터넷 접속을 통하여 각종 game, multimedia 등을 이용하는 고기능의 콘텐츠들이 잇달아 개발되면서 높은 출력을 가지는 Battery가 요구되었으나, 기대에 비해 현재의 Li 이온 Battery의 성능으로는 DMB폰을 2시간 정도 운전할 수 있는 수준이다. 이에 따라 근본적인 해결을 위하여 장시간 휴대용 전원의 운전을 가능하게 하는 마이크로 연료전지 (Micro-Fuel Cell)의 개발이 절실히 요구되는 실정이다[1]. 현재 마이크로 연료전지로 개발 진행 중인 연료전지 방식으로는 메탄올이나 포름산을 직접 연료로 공급하는 직접 액체 연료전지 (Direct Liquid Fuel Cell, DLFC) 방식과 메탄올 등의 연료를 개질하여 수소를 생산하여 연료로 공급하는 고분자 전해질 연료전지 (Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell, PEMFC) 방식이 있다. DLFC 방식은 구조를 간단하게 하여 작게 만들 수 있는 장점은 있으나, 메탄올 crossover 등과 같은 문제로 인하여 성능과 효율이 떨어지며, 성능 향상을 위해 개선해야 할 점이 많이 있다. 이에 반해 PEMFC는 작동 온도가 낮고, 시동시간이 빠르며, 에너지 밀도가 높기 때문에 휴대용 전원으로 적합하며, 성능이나 효율이 높은 장점이 있다. 그러나, 수소를 생산하여 공급할 수 있는 개질기를 포함하여야 하며, 이로 인해 부피가 커지는 단점이 있다[2~3].

PEMFC의 경우 수소를 연료로 이용하기 때문에 수소를 직접 공급하여 운전하는 것이 가장 우수한 성능을 보이나, 현재까지는 수소를 저장, 분배하는 기술이 확립되어 있지 않다. 따라서, 현재는 연료를 직접 개질하여 수소를 생산하고 이를 공급하는 시스템이 연구[4]되고 있으며, 이런 개질 방법으로는 연료를 물과 반응하여 수소를 생산하는 수증기 개질반응 (Steam Reforming Reaction, SR)과 산소와 반응하는 부분 산화반응 (Partial Oxidation, POX), 마지막으로 두 반응을 동시에 수행하는 자열 개질반응 (Auto-thermal Reaction)이 있다.

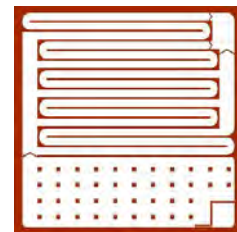
이전 연구에서는 MEMS 공정을 이용하여 실리콘 기판에 마이크로 채널을 가진 개질기를 제작하였으며, 촉매는 Cu-ZnO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 상용촉매를 충전법을 이용하여 마이크로 채널 내부에 충전하여 메탄올 수증기 개질반응에 적용하여 개질기 성능을 측정하였다. 그 결과, 반응기의 온도가 270 °C에서, 메탄올 전환율은 93% 정도로 우수하였으나, back pressure가 1.4 atm으로 아주 높게 나오는 문제점을 보였다.

이에 본 연구에서는, 기존에 제작된 반응기의 문제점을 해결하고자 stainless steel 반응기를 기계가공을 통하여 채널을 형성하였으며, 촉매를 충전법과 코팅법을 이용하여

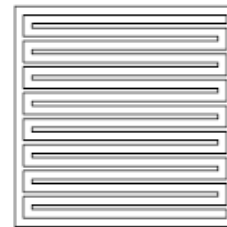
촉매를 고정하였으며, 기존의 MEMS 공정을 이용하여 제작한 반응기에 비해 높은 유량의 연료를 공급할 수 있게 되었고, 또한 메탄올 전환율도 높아 5 W급 연료전지를 운전하기에 충분한 수소를 생산할 수 있었다.

### 2. 반응기 제작

촉매를 코팅법으로 고정하기 위하여 제작한 stainless steel 반응기는 폭 1000 μm, 깊이 400 μm로 serpentine 형태의 채널로 가공하였으며, Fig. 1에 도시하였다.



(a)



(b)

Fig. 1. Schematic diagram of micro-channel reformer  
 (a) silicon wafer reactor using MEMS processor  
 (b) stainless steel reactor using mechanical processor.

기계 가공된 stainless steel 반응기의 채널에 촉매를 코팅하기 위하여 촉매 slurry 를 제조하였으며, 촉매 코팅을 위하여 먼저 알루미늄 졸을 코팅하고, 건조한 후에 촉매 코팅을 하여 촉매층이 안정하게 고정되도록 하였다. 그러나, 채널 내에 코팅된 촉매의 양이 너무 적어 촉매 활성은 아주 낮게 측정되었으며, 이에 촉매 loading 양을 증가시키기 위하여 촉매 펠렛을 분쇄하여 500 ~ 1000 μm 크기의 촉매를 채널 내에 충전하였다. 이는 이전 연구에서 촉매의 크기가 50 ~ 100 인 것을 이용한 경우, 높은 back pressure 가 측정되어 반응기에 유입되는 연료의 유량을 높이지 못한 것을 개선하기 위한 것이었으며, 이를 위하여 반응기의 유로도 그 크기를 다르게 제작하였다. 반응기의 유로는 기존의 serpentine 으로 동일하게 가공하였다.

### 3. 성능 측정 및 결과

메탄올 수증기 개질반응의 성능을 측정하기 위하여 먼

저 메탄올과 증류수를 1 : 1.5 (mole ratio)의 비율로 섞은 혼합 용액을 제조하고, 미량 정량 펌프를 이용하여 반응기에 유입하였으며, 이 때 생성되는 back pressure를 측정하기 위하여, 압력 측정 컨트롤러를 연결하였다. 메탄올 수증기 개질 반응은 250 °C 이상의 온도에서 진행되기 때문에 반응기의 온도를 유지하기 위하여 외부 전원을 heater에 연결하였다.

개질기의 성능은 온도와 혼합 용액의 유량에 따라 측정하였으며, 그 결과를 Fig. 2 와 3 에 도시하였다.

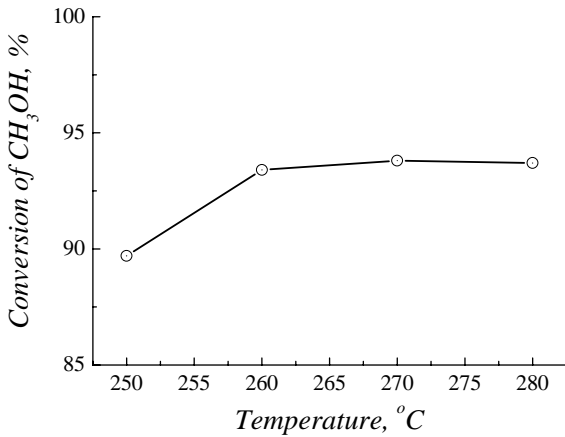


Fig. 2. Methanol conversion of catalyst with various reaction temperatures.

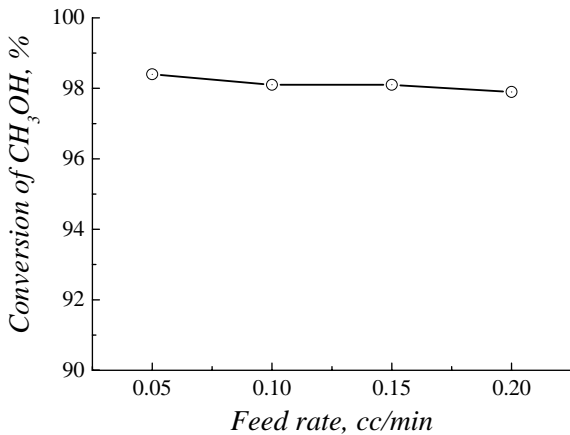


Fig. 3. Methanol conversion of catalyst with various feed rates of fuel mixture.

반응기 온도에 따른 성능을 측정하기 위하여 혼합 용액을 0.05 cc/min으로 동일하게 공급하면서 반응기의 온도를 변화시켜 보았다. 실험 결과 260 °C 이상의 온도에서는 동일한 메탄올 전환율을 보여 주며, 이는 반응기 내부의 촉매층 온도가 아니라 외벽의 온도를 측정한 것이기 때문에, 260 °C 의 온도가 메탄올 수증기 반응에 충분한 열을 공급하였기 때문으로 생각된다. 그리고, 270 °C의 동일한 온도에서 혼합 용액의 유량을 달리하며 성능을 측정하였으며, 그 결과 유량에 관계없이 98% 이상의 메탄올 전환율을 보였으며, 이는 반응기 내부에 loading된 촉매의 양이 충분하기 때문에 0.2 cc/min의 혼합 용액을 충분히 처리할 수 있는

것으로 판단할 수 있었다. 그리고, 연료의 공급속도에 따른 반응기 내부의 back pressure를 측정한 결과를 Table 1 에 정리하였다.

Table 1 Back pressure of reactor with various feeding rates

Feeding rate(cc/min)	0.05	0.1	0.15	0.2
Back pressure (kgf/cm <sup>2</sup> )	0.006	0.01	0.015	0.021

기존의 MEMS 공정을 이용하여 실리콘 기판에 마이크로 채널을 가공하여 제작한 반응기에서 관찰되었던 높은 back pressure (1.4 atm)에 비하여 거의 back pressure 가 관찰되지 않은 것으로 판단 될 수 있으며, 이는 촉매 크기를 크게 함으로써 back pressure 부분 문제를 해결할 수 있는 것으로 생각된다.

또한 혼합 용액의 공급 유량에 따른 출구 가스의 수소 양을 계산한 결과, 유량에 따라 얻을 수 있는 전력을 계산할 수 있었으며, 그 결과를 Table 2 에 정리하였다.

Table 2 Calculated power with various feeding rates

Feeding rate(cc/min)	0.05	0.1	0.15	0.2
Power (W)	2.3	4.6	7.0	9.3

\* fuel cell operates at 0.6 V and utilization of H<sub>2</sub> is 0.6.

#### 4. 결론

휴대용 고분자 전해질 연료전지용 수소 공급을 위한 마이크로 개질기를 구성하였으며, 상용촉매를 이용하여 반응기의 성능을 측정하였다. 기존의 MEMS 공정을 이용하여 제작한 실리콘 기판 반응기에 비해 많은 유량의 혼합 용액을 처리할 수 있었고, 실리콘 기판 반응기에서 관찰되었던 높은 back pressure 의 문제점도 해결할 수 있었다. 그리고, 반응기 내에 공급되는 혼합용액의 유량을 조절함으로써 5 W 급 고분자 전해질 연료전지를 운전하기 위한 충분한 수소를 생산할 수 있으며, 향후에는 외부 전원을 연결한 heater 를 연소 촉매 층으로 대체하는 개질기를 구성하여 반응기의 성능을 측정하고자 한다. 또한 이렇게 구성된 개질기와 고온형 고분자 전해질 연료전지를 직접 연결하여 연료전지를 운전하고 그 특성을 파악하고자 한다.

#### 후기

이 연구는 한국기계연구원 (Korea Institute of Machinery and Materials)과 산업자원부 (Ministry of Commerce Industry and Energy)의 재원을 지원받아 수행되었습니다.

#### 참고문헌

1. Nikkei Electronics, **889**, pp.103~129, 2004.
2. J. Larminies, A. Dicks, Fuel Cell Systems Explained, 2th, John Wiley & Son, 2002
3. J. Hallmark, R. Kelley, "Portable 20W reformed methanol-to-hydrogen fuel cell system prototype", Proceedings of the 6<sup>th</sup> Small Fuel Cells for portable applications, pp. 199 ~214, 2005
4. R.A. Lemons, "Fuel cells for transportation", J. Power Sources, **29**, pp 251~264, 1990.