

## 수소액화용 직접냉각장치의 설계 및 성능시험

백중훈\*, 강병하\*, 장호명\*\*

\*한국과학기술연구원, \*\*홍익대학교  
\*136-791, 서울시 성북구 하월곡동 39-1  
한국과학기술연구원 기전연구부 공조환경제어연구팀  
\*\*121-791, 서울시 마포구 상수동 72-1  
홍익대학교 공과대학 기계공학과

Design and Performance Test of a Direct Cooling Equipment for Hydrogen Liquefaction

Jong-Hoon Baik\*, Byung-Ha Kang\*, Ho-Myung Chang\*\*

\*KIST, \*\*Hong-Ik University

### 요 약

수소액화를 위한 직접냉각장치를 개발하고, 이의 성능특성을 시험하였다. 직접냉각장치는 액화용기, 복사열드, 저온조와 GM냉동기 등으로 구성하였다. 개발된 액화장치의 cool-down 및 warm-up 특성이 상세하게 규명되었다. 본 냉각장치에서 냉각이 시작된지 약 45분 후, 액화용기내의 수소가 액화되기 시작함을 확인하였다. 또한 동일한 실험을 기체헬륨에 대하여 수행하였으며, 기체헬륨은 주어진 작동조건에서 액화되지 않으므로 수소의 경우와는 다른 cool-down 및 warm-up 특성을 보였다. 충전된 기체의 자연대류현상의 영향을 고찰하기 위하여 액화용기내에 진공상태를 유지하면서 시험하였다. 이때 진공상태에서의 액화용기의 냉각시간은 현저히 증가함을 보였다.

### Abstract

A direct cooling equipment for hydrogen liquefaction has been developed and tested. A direct

cooling equipment consists of a liquefaction vessel, a radiation shield, a cryostat and a GM refrigerator. The cool-down and warm-up characteristics of the liquefaction apparatus have been investigated in detail. It is found that the hydrogen starts to be liquefied in the liquefaction vessel after 45 minutes of cool-down. The cool-down and warm-up tests of helium gas are also performed. The cool-down and warm-up characteristics of helium gas are found to be very different from those of hydrogen gas, since helium is not liquefied under the present operating conditions. When the liquefaction vessel is evacuated, natural convection phenomena of charged gas in liquefaction vessel can be removed. It is seen that the cool-down time of liquefaction vessel is substantially increased in vacuum environment.

## 1. 서론

화석연료의 과다한 사용으로 인한 대기오염과 지구 온난화는 점점 더 심각해지고 있으며 이 문제를 해결하기 위한 방안의 하나로 최근 국내외에서는 탄화수소계가 아닌 연료를 사용하는 시스템의 개발이 활발히 진행 중이다. 그 중 가장 대표적인 것이 바로 수소이용기술이며 가스 형태로 생성된 수소를 각종 이용시스템에 사용하기 위해서는 부피를 축소시켜야 수송도 간편하고, 저장도 용이하여 쉽게 사용할 수 있게 된다<sup>1)-4)</sup>. 수소의 부피를 축소시켜 저장하는 방법 중 저장용기의 무게를 포함한 단위질량 당 저장에너지가 가장 큰 것은 수소를 액화시켜 액체수소형태로 저장하는 방법이다<sup>2)</sup>. 따라서 저장 및 수송이 용이한 액체 수소상태로의 수소저장을 위해 수소액화 및 저장에 관해 관심이 고조되고 있다. 특히 저온공학(cryogenic engineering)을 이용한 수소액화기, 저장용기, 펌프, 수송차량 등에 대한 연구가 활발히 진행 중이다<sup>1)-3)</sup>.

수소액화에 이용될 수 있는 극저온용 액화사이클로는 액체질소 예냉식 Linde-Hampson 사이클, 액체질소 예냉식 Claude 사이클, 액체질소-기체헬륨 예냉식 수소액화사이클, GM-JT 사이클 등을

들 수 있다<sup>6)-9)</sup>. 이 중 액체질소 예냉식 Claude 사이클은 주로 대형 수소액화시스템에 많이 이용되고 있으며, 그 예로 Claude 액화사이클을 이용한 액화능력 2,000 Nm<sup>3</sup>/hr급 대형 액화플랜트도 운영되고 있다<sup>5)</sup>. 소형 액화시스템의 경우는 열재생형 극저온냉동기 중의 하나인 Gifford-McMahon 냉동기(이하 GM냉동기)를 예냉기로 사용하여 기체수소를 충분한 온도, 즉 역전온도이하로 냉각한 후 Joule-Thomson 밸브(이하 JT밸브)를 통한 팽창과정으로부터 액체수소를 얻는 GM-JT 액화사이클 및 단일 GM냉동기를 기체수소에 직접 접촉시켜 냉각하여 액화시키는 직접냉각방식의 액화사이클 등이 고려된다. 이 중 GM-JT 액화사이클은 직접냉각방식보다 큰 용량의 수소액화를 기대할 수 있으나 수소압축기, 열교환기, JT 밸브 등 사이클 구성이 복잡하고 고가인 단점이 있다. 그러나 실제로 현재 널리 사용되고 있는 상용화된 GM냉동기는 보통 무부하에서 약 10K까지 도달가 능하며 수소는 n.b.p(normal boiling point)가 20K<sup>10)</sup> 정도로 JT 밸브를 통한 액화방법이외에도 GM냉동기의 자체 냉각성능만으로 소량의 수소액화가 가능하다고 판단된다. 실제로 냉동기 직접냉각방식을 이용한 극저온냉매의 액화연구는 최근 시도된 바가 있으며 이는 수소와 n.b.p가 비슷한

액체네온(n.b.p : 27.1K)을 이용하여 고온초전도체를 냉각하고자 GM냉동기를 사용하여 비교적 간단하게 구성된 액화시스템을 제작한 경우였다<sup>11)</sup>.

따라서 본 연구에서는 충분한 냉각용량을 가진 GM냉동기만을 이용하여 GM-JT 액화사이클보다 구성이 간단하고 저가이며 유지보수가 간편한 직접냉각방식을 통한 액화수소를 얻는 방법을 선정하여, 액화장치를 설계하였고, 이에 대한 cool-down 특성 및 warm-up 특성을 실험을 통하여 규명하였다.

## 2. 액화장치의 설계 및 성능시험

### 2.1 액화장치의 설계

기체수소를 냉동기에 직접 접촉시켜 절대온도 20K까지 냉각하기 위해서는 냉동기의 최대 냉각 성능이 결정되어 있는 경우 상온으로부터 유입되는 열손실을 최대한 감소시킬 수 있는 보다 효율적인 설계가 요구된다. 이러한 설계에는 극저온시스템에서 공통적으로 고려되어야 할 전도(conduction), 복사(radiation)열손실 등을 최대한 감소시킬 수 있는 기술이 반드시 포함되어야 한다<sup>6)-9),12)</sup>. 또한 기체수소가 냉동기에 직접 접촉되어 냉각되는 경우, 보다 효율적인 냉각을 위한 설계가 고려되어야 하며, 냉각 혹은 액화된 수소가 저장되는 액화용기 또한 냉동기에 의해 충분히 냉각되어야 한다. 이러한 제반 사항들을 모두 고려하여 설계된 액화장치의 개략도를 Fig. 1에 나타내었다.

Fig. 1에서 보는 바와 같이 GM냉동기의 1단과 2단을 모두 기체수소와 액화용기에 직접 접촉시켜 동시에 냉각하도록 설계하였다. 액화용기는 상온으로부터의 전도열손실을 최소화하고 냉각시간을 줄이기 위하여 두께를 최소한 줄이도록 하였다. 특히 냉동기와 액화용기와의 기계적인 접촉이 완전하지 않으면 적절한 냉각을 수행할 수 없으므로

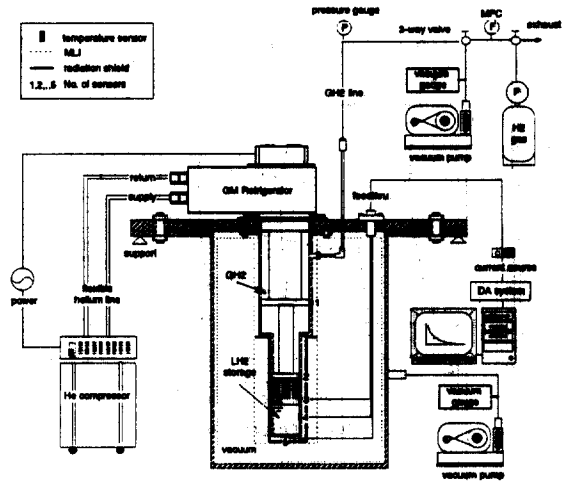


Fig. 1 Schematic diagram of H<sub>2</sub> liquefaction apparatus

이 부분의 설계가 액화장치의 액화성능을 좌우할 만큼 중요하다고 할 수 있다. 또한 냉동기의 2단 접촉부분에는 열전도율이 높은 구리로 된 fin을 제작하여 냉동기의 2단과 기체수소와의 접촉면적을 증가시켜 보다 빠르고 효율적인 냉각을 수행하도록 설계하였다.

액화용기는 수소가스통으로부터 일정한 압력의 기체수소를 공급받게 되며 GM냉동기의 1단과 2단에 접촉하면서 냉각된다. 이때 액화용기가 냉동기와 접촉된 1단과 2단 부분, 액화용기의 상-중-하단에 각각 극저온용 실리콘 다이오드 온도센서가 부착되어 온도를 측정하게 된다. 또한 냉각이 진행됨에 따라 충전된 기체수소의 비체적 감소로 인하여 연속적인 기체수소의 보충이 필요하게 되며, 이때 보충되는 수소의 양을 MFC(mass flow meter)를 이용하여 측정하고 이와 동시에 액화용기내의 온도를 측정함으로써 수소의 액화량을 계산할 수 있도록 구성되어 있다. 그 이외에 외부로부터의 대류, 전도 및 복사열손실을 최소화하기

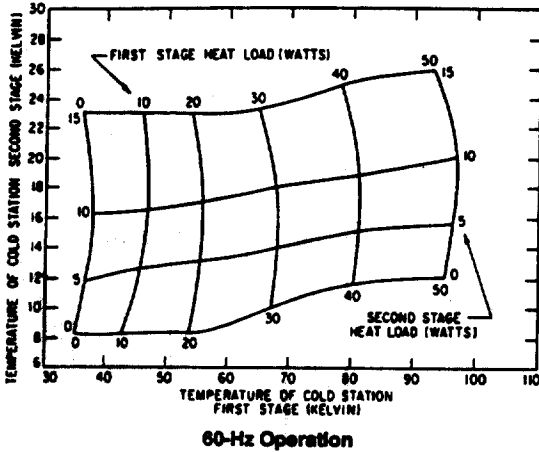


Fig. 2 Performance curve of the GM refrigerator

위하여 진공챔버와 복사실드를 액화용기의 외측에 설치하였으며 또한 진공챔버의 내측과 복사실드의 외측을 초단열재(MLI ; multi-layer insulation)로 수 십겹 감아 복사열손실을 극소화하였다. 진공펌프를 이용하여  $2 \times 10^{-3}$  torr정도로 진공도를 유지하였으며 초단열재와 병행하여 액화장치에 적용하여 외부로부터의 복사열손실을 1W이내로 줄일 수 있도록 하였다. 그 밖에 온도센서로부터의 신호처리를 위한 feedthru, data acquisition system 등을 준비하였다.

냉각기로 사용되는 GM냉동기(CTI사, Model 1020CP)는 헬륨압축기로 압축된 헬륨이 열재생기를 통과하면서 냉각되고 이어 팽창과정을 거치면서 극저온영역으로 냉각된다. 이 GM냉동기의 성능은 1단 77K에서 35W, 2단 20K에서 12W정도의 냉각성능을 갖추고 있으며, 그 성능곡선을 Fig. 2에 나타내었다.

## 2.2 성능시험

수소액화장치의 성능시험을 통하여 액화장치가

정상상태에 도달하는 냉각특성과 냉각시간, 최저 도달온도, 액화량 등이 측정된다. 우선 액화장치의 성능시험에 앞서 본 시험에 사용된 냉동기의 무부하 성능시험을 수행하였다. 이는 액화용기 및 복사실드 등을 장착하지 않고 초단열재와 진공용기만을 장착하여 무부하에서의 냉동기 성능시험을 수행하였다. 수소를 액화용기내에 충전하여 사용한 냉각시험에서는 용기의 압력을 3기압으로 유지하였다. 이는 액화된 수소를 액체수소 이송관을 통하여 저장할 경우 보통 1.3~1.5기압 정도로 저장한다고 보고되고 있으며<sup>5),13)</sup>, 이렇게 저장용기로 이송할 경우 액화되지 않은 기체수소와 대기압과의 압력차를 이용하여 이송한다면 수소의 압력은 2~3기압 정도가 적절할 것으로 예상되기 때문이다. 이때 3기압에서의 수소의 액화온도는 약 24.6K 정도이다. 수소냉각 이외에 n.b.p가 매우 낮은 헬륨(n.b.p : 4.2K)을 동일한 3기압으로 유지하면서 냉각특성을 시험하였으며, 액화용기내에 진공을 생성하여 냉각되는 기체의 자연대류현상을 배제한 냉각시험을 수행하여 그 결과를 비교하였다. 동일한 초기조건에서 냉각을 수행하여야 적절한 비교를 할 수 있기 때문에 냉각시험을 수행하기 전의 초기온도를 270K으로 설정하였다. 수소 및 헬륨의 냉각시험은 시험 전 진공펌프를 이용하여 액화기내의 공기를 제거하고 수소를 충전하는 과정을 2~3회 반복하는 퍼지(purge)과정을 수행한 후 냉동기를 작동시켜 시간에 따른 냉각특성을 기록하였으며 시험중 진공펌프를 계속 작동시켜 적절한 진공도를 유지하였다. 냉각시험 후에는 냉동기의 운전을 정지한 후 시간에 따른 warm-up 특성을 각 경우에 대하여 기록하였으며, 이때 액화용기내의 압력상승은 약 10기압으로 조정된 relief밸브를 이용하여 기체수소를 대기로 배출시킴으로써 해결하였다.

### 3. 결과 및 고찰

냉동기의 성능을 시험하기 위하여 무부하에서의 냉각시험을 수행하였으며, 그 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 냉동기의 1단이 먼저 냉각되며 1단에서 충분한 냉각이 이루어진 후 2단의 냉각이 급속히 수행된다. 정상상태에 도달하는데 소요된 냉각시간은 약 30분 정도였다. 무부하에서의 최저도달온도는 1단에서 26K, 2단에서 8.3K으로 냉동기 제조사에서 제공한 냉동기 성능곡선(Fig. 2)과 비교해볼때 1단의 성능이 약간 우수한 것으로 나타났다. 또한 제공된 성능곡선은 열손실이 전혀 없을 때의 결과이므로, 이와 비교해볼때 본 시험장치의 단열시스템 설계는 적절한 것으로 판단된다.

액화장치의 성능시험을 위하여 냉동기의 1단과 2단에 액화용기를 접촉시키고 Fig. 1에 표시된 바와 같이 액화용기의 외측에 5개의 온도센서를 장착하고 복사설드와 초단열재를 장착하였다. Fig. 4(a)는 액화용기내에 수소를 3기압으로 충전하고 이를 유지하면서 초기온도가 270K일때 냉동기를

작동시킨 후의 냉각특성을 나타낸 결과이다. 우선 무부하일때보다 냉각시간 및 냉각온도가 높아진 것을 관찰할 수 있으며 냉동기의 1단 및 2단온도의 냉각곡선과 액화용기 표면의 온도인 3,4,5의 냉각곡선이 그 양상에 있어 차이가 있는 것을 알 수 있다. 냉동기의 1단, 2단 및 액화용기가 충분히 냉각된 후 3기압에서의 수소의 포화온도인 약 24.6K에 도달하면 냉동기의 1단을 제외한 2,3,4,5의 온도가 이 온도로 모두 일정하게 유지되며 이는 수소의 액화가 시작되어 진행되고 있음을 나타내

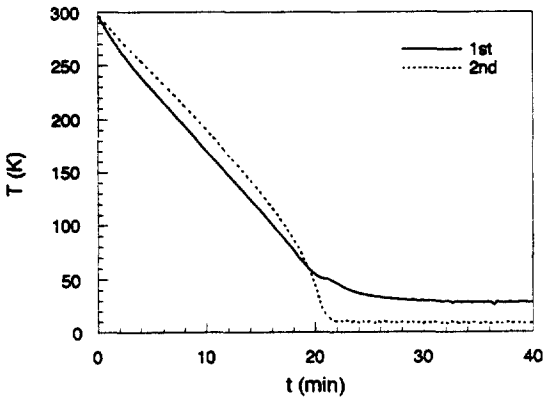


Fig. 3 Cool-down characteristics without load

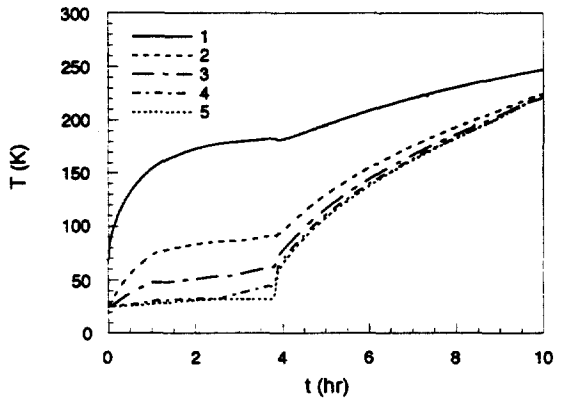
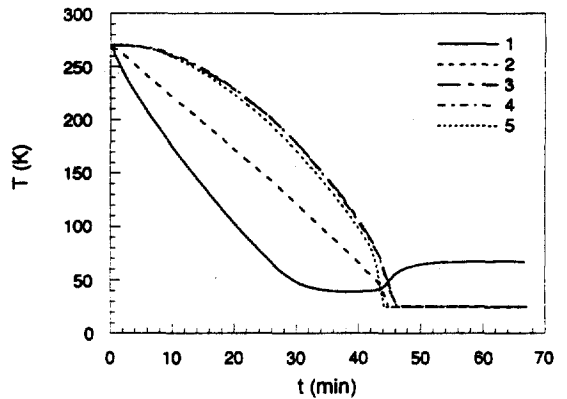


Fig. 4 Cool-down(a) and warm-up(b) characteristics of hydrogen

고 있다. 액화가 시작될 때 냉동기 1단의 온도는 다시 조금씩 상승하게 되며 이는 수소의 잠열(latent heat)에 의한 냉각부하의 증가때문인 것으로 판단된다. 액화가 계속 진행되어 냉동기 1단의 온도상승율이 0일 때 액화장치가 정상상태에 도달한 것이다. 이때의 액화량은 0.01g/s(6.7 NI/min)으로 나타났다.

액화장치의 warm-up 특성을 규명하기 위하여 냉동기의 작동을 멈춘 후, 각 부분의 온도를 기록한 결과를 Fig. 4(b)에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 냉동기의 1단 및 2단의 온도는 급격히 상승하게 되나, 액화용기내의 온도는 조금씩 상승하게 된다. 그 이유는 앞서 언급한 바와 같이 relief밸브가 10기압으로 조정되어 있으며 이 압력에 도달할 때까지는 밀폐된 액화용기내의 상승된 압력에 대응하는 포화온도로 유지되며 액화된 수소도 천천히 기화되기 때문이다. 그 후 계속해서 천천히 상승하던 온도는 액화용기내의 압력이 10기압 이상이 되는 약 4시간을 전후하여 미량의 기체수소가 배출되기 시작하면서 급격히 상승하게 된다.

위와 동일한 시험을 기체헬륨에 대하여 동일한 조건하에서 수행하였으며 그 결과를 Fig. 5에 도시하였다. 3기압의 기체헬륨은 액화가 되지 않으므로 수소의 경우와는 다른 양상을 보이고 있다. 또한 무부하 성능시험의 결과보다 약간 높은 최저 도달온도(약 10.2K)에 도달하고 있는데 이는 액화용기 및 복사실드 등 냉각부하의 증가에 의한 영향때문이다. 냉동기의 작동을 중지시킨 후 warm-up특성을 Fig. 5(b)에 나타내었으며 액화용기의 온도상승곡선도 수소와는 다르게 모두 균일한 온도상승폭을 나타내고 있다. 또한 약 1시간 30분 이후의 온도상승기울기가 일정하여 온도상승의 원인이 상온으로부터의 전도열전달에 의한 것임을 알 수 있다.

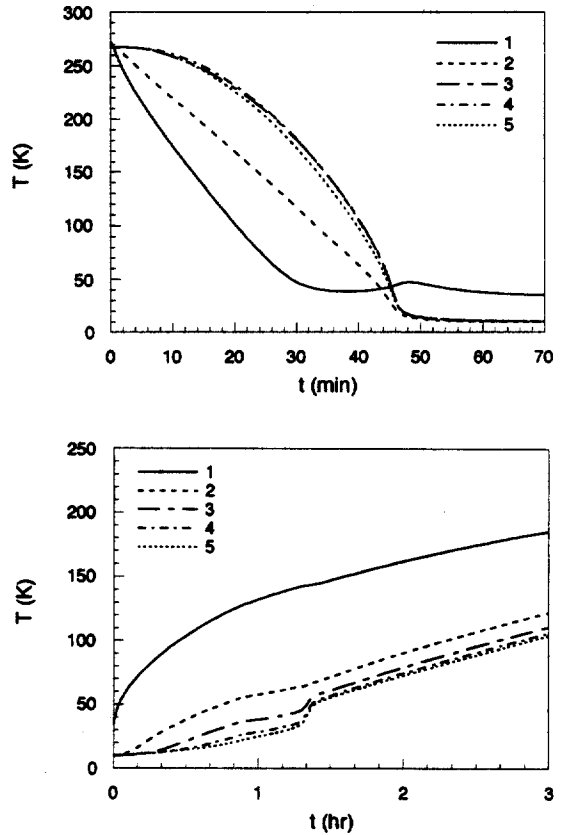


Fig. 5 Cool-down(a) and warm-up(b) characteristics of helium gas

액화용기내부에 진공상태를 유지하여 순수한 냉동기로부터의 전도열전달만으로 액화용기를 냉각하는 시험을 수행하였으며 그 결과를 Fig. 6에 나타내었다. Fig. 6(a)에서와 같이 냉각되는 시간이 매우 오래 걸리며 냉동기의 1단을 제외한 2단 및 액화용기의 냉각은 아주 느리게 진행되고 있음을 볼 수 있다. 이는 용기내 충전된 수소나 기체헬륨이 냉각되면서 발생하는 자연대류현상이 액화용기의 냉각에 큰 영향을 주고 있음을 알 수 있다. 이러한 결과는 액화용기를 냉각한 후 기체를 충전하는 방법과 기체를 충전하고 냉각을 수행하

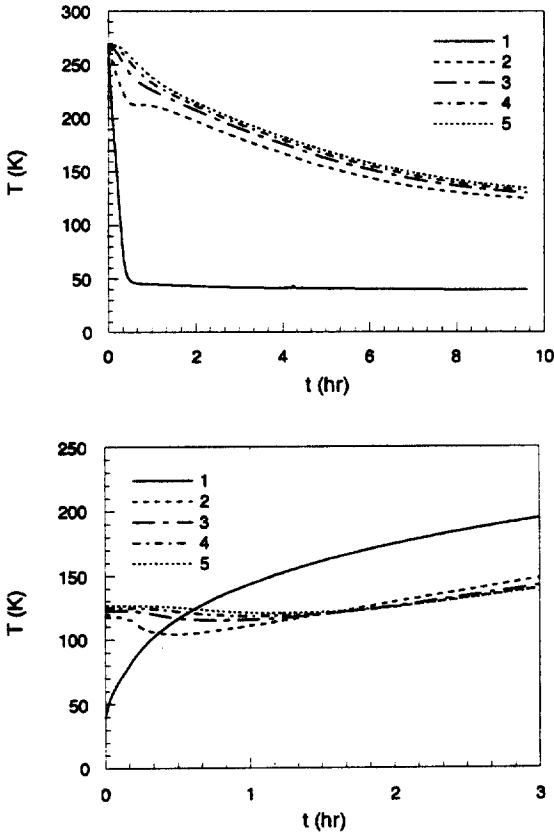


Fig. 6 Cool-down(a) and warm-up(b) characteristics in vacuum

는 방법이 그 시험순서에 있어 매우 큰 차이가 있음을 입증하고 있다. 또한 냉각특성이 기체가 충전된 경우와는 달리 냉동기 1단의 온도가 2단의 온도보다 낮은 결과를 보이며 또한 상온에서 멀리 위치할수록 높은 온도분포를 보이고 있는데, 이는 1단이 먼저 냉각되는 GM냉동기의 특성과 전도열 전달만으로는 냉각방식 등의 복합적인 영향때문인 것으로 판단된다. Fig. 6(b)는 warm-up 특성을 보여주고 있으며 전도열유입에 의하여 온도가 상승되고 있음을 약 1시간 30분 후의 결과로부터 알 수 있다.

#### 4. 결론

수소를 보다 높은 에너지밀도를 가진 액체수소 형태로 저장하여 수송 및 저장이 간편하고 사용이 용이하도록 하는 기술을 개발하고자 직접냉각방식의 수소액화장치를 설계하고 그 성능특성을 규명하였다. 수소의 직접액화를 위하여 GM냉동기를 사용하였으며, 이에 따른 액화용기, 단열용기, 복사쉴드, 온도 및 압력 측정장비, 진공시스템 등으로 수소액화시험장치를 구성하였다. 냉각용 GM냉동기의 무부하 성능시험을 수행하였으며, 액화용기내에 수소 및 헬륨기체를 3기압으로 유지하면서 냉각성능을 시험하였다. 수소의 경우, 냉동기 작동 후 약 40~50분이 경과되었을때 액화가 시작되고 있음을 액화용기의 온도분포를 통하여 확인하였으며, 이때의 수소액화량은 0.01g/s(6.7 NL/min)였다. 또한 냉동기 정지 후 상온으로부터 열유입에 따른 warm-up 특성시험을 수행하였다. 동일한 시험을 기체헬륨에 대하여 수행하였으며, 헬륨은 주어진 작동조건에서 액화되지 않으므로 수소와는 다른 cool-down 및 warm-up 특성을 나타내었다. 액화용기내에 진공상태를 유지하면서 동일한 시험을 수행한 결과, 액화용기 내부에 충전된 기체의 자연대류현상이 배제됨으로 인하여 냉각이 아주 느리게 진행됨을 알 수 있었다. 본 연구에서 얻어진 결과는 차후 연구될 액체수소의 이송 및 저장장치 개발에 중요한 설계자료를 제공할 수 있을 것이다.

#### 후 기

본 연구는 통상산업부 대체에너지 개발사업계획의 일환으로 수행된 결과이며, 상기 기관의 연구비 지원에 감사드립니다.

## 참고 문헌

1. C.-J. Winter, J. of Hydrogen Energy, 12 (1987), 521-546
2. J. Barclay, Cryogenic Engineering Conference and International Cryogenic Materials Conference, Conference Abstract(1995), 102
3. M. A. Daugherty, F. C. Prenger, D. E. Dancy, F. J. Edeskuty, and D. D. Hill, Cryogenic Engineering Conference and International Cryogenic Materials Conference, Conference Abstract(1995), 103
4. 이종태, "수소엔진 및 수소자동차의 개발현황", 한국수소에너지학회지(1992)
5. M. Wanner, R. Gross, W. Otto, A. Patzelt, Advances in Cryogenic Engineering, 39 (1994), 1217-1222
6. K. D. Timmerhaus and T. M. Flynn, "Cryogenic Process Engineering," Plenum Press, New York and London, U.S.A.(1989)
7. R. F. Barron, "Cryogenic Systems," 2nd ed, Oxford Univ. Press, New York, U.S.A.(1985)
8. International Institute of Refrigeration, "Liquid Hydrogen," Pergamon Press, New York, U.S.A.(1965)
9. Graham Walker, "Cryocoolers Part I, II," Plenum Press, New York and London, U.S.A.(1983)
10. D. G. Friend, "NIST Thermophysical Properties of Pure Fluids Version 3.0," NIST Standard Reference Database 12, U. S. Dep. of Commerce, NIST, U.S.A. (1992)
11. R. N. Richardson and A. C. R. Tavnor, Cryogenics, 35(1995), 195-198
12. G. K. White, "Experimental Techniques in Low-temperature Physics," 3rd ed, Clarendon Press, Oxford Univ. Press, New York, U.S.A.(1987)
13. Messer Griesheim GmbH, "Wide Neck Liquid Hydrogen Dewar : Technical Report," Germany(1996)