

고분자 전해질 연료전지용 플라즈마 개질 시스템에서 수소 생산 및 CO 산화반응에 관한 연구

홍석주 · 임문섭* · 전영남*[†]

조선대학교 기계공학과

501-759 광주시 동구 서석동 375

*조선대학교 환경공학부·BK21 바이오가스기반 수소생산 사업팀

501-759 광주시 동구 서석동 375

(2007년 7월 22일 접수, 2007년 8월 29일 채택)

Study on Hydrogen Production and CO Oxidation Reaction using Plasma Reforming System with PEMFC

Suck Joo Hong, Mun Sup Lim* and Young Nam Chun*[†]

Department of Mechanical Engineering, Chosun University, 375 Seoksuk-dong, Dong-gu, Gwangju 501-759, Korea

*BK21 Team for Hydrogen Production, Department of Environmental Engineering, Chosun University,

375 Seoksuk-dong, Dong-gu, Gwangju 501-759, Korea

(Received 22 July 2007; accepted 29 August 2007)

요 약

고분자 전해질 연료전지 운전에 필요한 수소 공급 장치로서 플라즈마 개질 방법을 이용한 개질기와 일산화탄소 산화반응을 위한 전이 반응기를 설계 및 제작하였다. GlidArc 방전을 이용한 저온플라즈마 개질기는 Ni 촉매를 동시에 사용하여 CH₄ 개질함으로써 H₂ 선택도를 증대하였다. 개질기의 변수별 연구로서 촉매 온도, 가스 조성비, 전체 가스 유량, 전압변화 그리고 개질 특성 및 최적 수소 생산조건을 연구하였으며, 전이반응기의 변수별 연구로서 선택적 산화반응기(PrOx)에 주입되는 공기량, 전이 반응기에 주입되는 수증기량 그리고 온도에 대하여 연구하였다. 플라즈마 개질기에서 최대 수소 생산 조건은 O₂/C 비가 0.64, 가스유량은 14.2 l/min, 촉매 반응기 온도 672 °C 그리고 유입전력이 1.1 kJ/L일 때 41.1%로 최대 수소 농도를 나타냈다. 그리고 이때의 CH₄ 전환율, H₂ 수율 그리고 개질기 에너지 밀도는 각각 88.7%, 54%, 35.2%를 나타냈다. 전이 반응기에서 조사된 개질 가스로부터 최대 CO 전환율을 보이는 조건은 2단으로 구성된 PrOx에 주입되는 O₂/C 비가 0.3, HTS에서 주입되는 수증기 주입량 비가 2.8 그리고 HTS, LTS, PrOx I, PrOx II 반응기 온도가 475, 314, 260, 235 °C 일때 가장 높은 CO 전환율을 나타냈다. 플라즈마를 이용한 반응기는 예열 시간은 30분이 소요되었으며, 전이 반응기에서 나오는 최종 개질 가스의 조성은 H₂ 38%, CO<10 ppm, N₂ 36%, CO₂ 21% 그리고 CH₄ 4%로 나타났다.

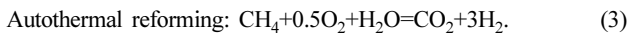
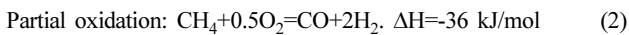
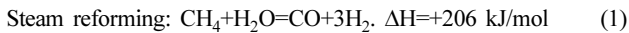
Abstract – Fuel reformer using plasma and shift reactor for CO oxidation were designed and manufactured as H₂ supply device to operate a polymer electrolyte membrane fuel cell (PEMFC). H₂ selectivity was increased by non-thermal plasma reformer using GlidArc discharge with Ni catalyst simultaneously. Shift reactor was consisted of steam generator, low temperature shifter, high temperature shifter and preferential oxidation reactor. Parametric screening studies of fuel reformer were conducted, in which there were the variations of the catalyst temperature, gas component ratio, total gas ratio and input power. and parametric screening studies of shift reactor were conducted, in which there were the variations of the air flow rate, steam flow rate and temperature. When the O₂/C ratio was 0.64, total gas flow rate was 14.2 l/min, catalytic reactor temperature was 672 °C and input power 1.1 kJ/L, the production of H₂ was maximized 41.1%. And CH₄ conversion rate, H₂ yield and reformer energy density were 88.7%, 54% and 35.2% respectively. When the O₂/C ratio was 0.3 in the PrOx reactor, steam flow ratio was 2.8 in the HTS, and temperature were 475, 314, 260, 235 °C in the HTS, LTS, PrOx, the conversion of CO was optimized conditions of shift reactor using simulated reformat gas. Pre-heat time of the reactor using plasma was 30 min, component of reformed gas from shift reactor were H₂ 38%, CO<10 ppm, N₂ 36%, CO₂ 21% and CH₄ 4%.

Key words: Non-Thermal Plasma, Hydrogen, Reforming, Methane, Shift Reactor

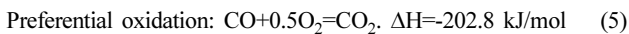
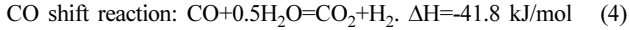
[†]To whom correspondence should be addressed.
E-mail: yunchun@chosun.ac.kr

1. 서 론

에너지 수요 및 환경 문제가 증가하면서, 대체 에너지를 개발하는 기술에 대하여 연구가 진행되고 있다. 특히, 수소는 청정 연료로서 내연기관에 사용되는 화석연료의 대체가 가능하며, 연료전지를 통하여 에너지 효율을 높일 수 있다. 연료개질 기술은 탄화수소 계열의 연료(C_nH_m)로부터 수소를 생산하는 방법으로서 수증기 개질[1-2], 이산화탄소 개질[3], 부분산화 개질[4-5] 그리고 촉매 개질[6] 및 자열 개질(autothermal reforming) 등이 있다. 이 중 식 (1)의 수증기 개질 방법은 수소 생산 측면에서는 가장 효율적이나 흡열반응으로서 고온의 외부 열원과 고압의 수증기를 공급해야 하므로 장치가 커지며, 초기 시동 및 부하특성이 낮게 나타나는 단점을 가지고 있다.



이러한 방법으로 생성된 개질가스는 수소가 농후한 상태이며, 일부 일산화탄소와 질소 등 개질방법에 의해 조성이 다르게 된다. 이 중 부분산화 개질에서 배출되는 CO의 농도는 일반적으로 약 15~20%로서 상당히 높은 수준이므로 이를 낮추기 위한 반응공정으로서 개질가스 전이반응이 필요하다. 특히, 고분자 전해질 연료전지(PEMFC)는 CO에 의한 전극 피독이 문제로 인하여 개질반응 이후 전이 반응기에서 식 (4-5)의 반응을 이용하여 CO를 저감하는 연구가 진행되고 있다[7-8].



따라서 본 연구에서는 발열반응인 부분산화 반응과 자열 개질반응을 이용하여 외부 열원에 대한 문제를 줄이고 빠른 시동특성을 위해 부채꼴형 전극을 갖는 저온 플라즈마 개질기와 전이 반응기를 연계한 통합형 시스템을 설계 및 제작하였다. 또한, 시동특성을 파악하고 개질기 및 전이반응기의 가스의 농도를 측정함으로써 연료전지용 개질 시스템의 기초 자료를 확보하고자 하였다.

2. 실험 장치 및 방법

2-1. 실험 장치

연료전지용 개질 시스템은 일반적으로 예열 버너, 개질기, 고온전이, 저온전이, 선택적 산화반응으로 구성되어 있으며, 각 공정에서 측정된 온도 그리고 사용된 촉매 및 실험 조건에 따른 결과에 대하여 Fig. 1에 나타냈다.

사용된 촉매는 모두 상용 촉매이며, 촉매에 대한 특성은 Table 1에 나타냈다.

Fig. 2는 연료전지용 개질 시스템의 세부 구성도를 나타냈다. 본 연구에서 제안된 연료전지용 개질 시스템은 플라즈마 개질기와 전이 반응기로 나누어진다. 플라즈마 개질기는 부채꼴 형태의 전극을 갖는 플라즈마 발생 장치, 촉매반응기 그리고, 전원 공급 장치로 구성되었다. 부채꼴 플라즈마 발생 장치에는 3개의 부채꼴 형태의 전극이 반응기 내부에 120도로 연결이 되어있으며 전극 간에 간격은 3 mm이다. 반응기는 내부 단열 및 절연을 위해 세라믹(99%, Alumina) 재질을 사용하였다. 촉매반응기는 예열을 위해 이중관으로 제작하였다. 촉매반응기와 플라즈마 반응기 사이에는 분리판이 구성되어 촉매 지지의 역할과 개질 가스의 체류시간을 증대하도록 하였다. 플라즈마 반응기와 촉매반응기의 용량은 각각 1 L, 0.5 L이다. 전원 공

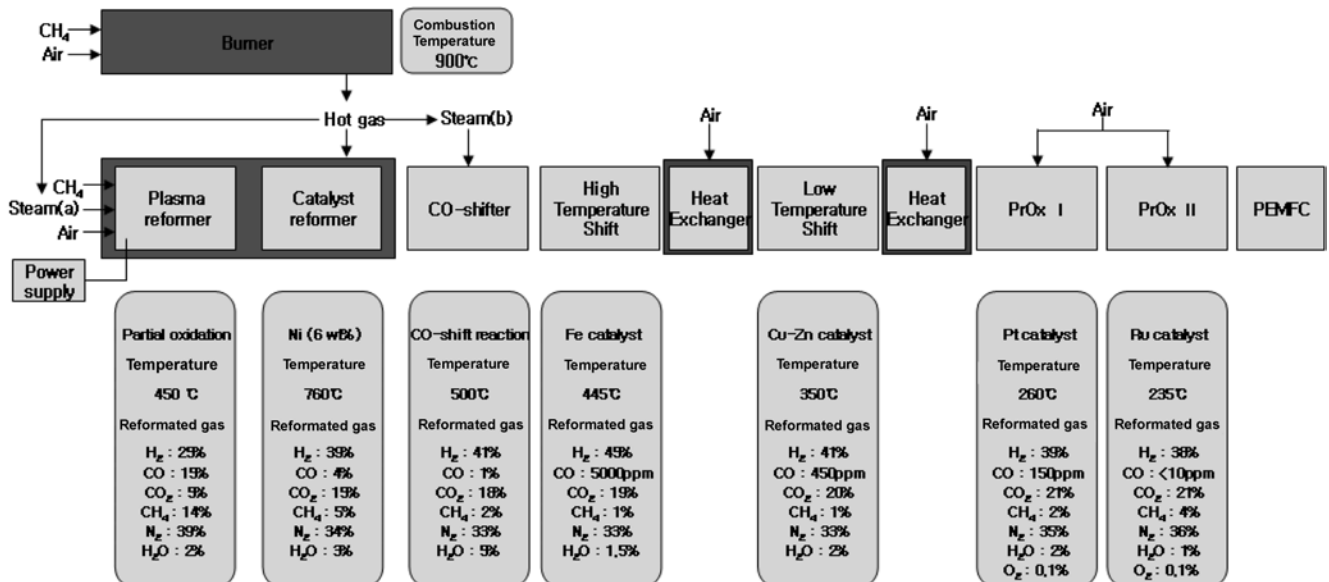


Fig. 1. Diagram of the fuel reformer system for PEMFC.

Table 1. Characteristics of commercial catalysts

Step of reactor	Catalyst reactor	High temperature shift	Low temperature shift	Preferential oxidation I	Preferential oxidation II
Shape	Sphere	Pellet	Pellet	Sphere	Sphere
Size	OD; 2 mm	3×3 mm	3×3 mm	1.5 mm	1.5 mm
Compostion	NiO (6 wt.%)	Fe ₂ O ₃ : Cr ₂ O ₃ = 85 : 15	Cu and Zn based	Ruthenium (1.8~2 wt.%)	Platinum (2 wt.%)

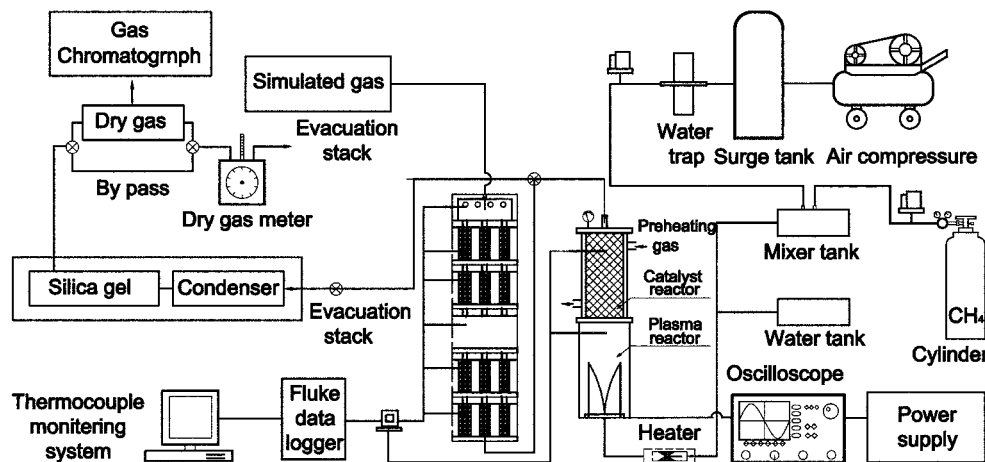


Fig. 2. Schematic of the fuel reformer system for PEMFC.

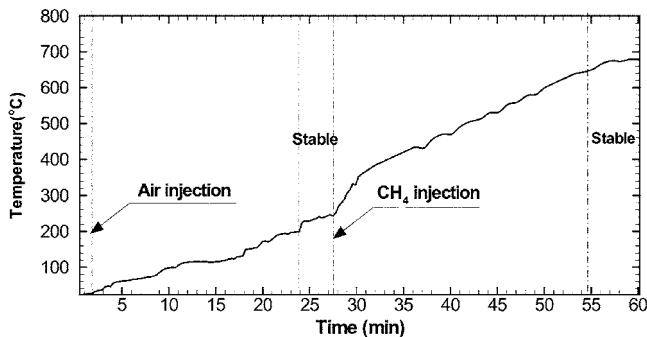


Fig. 3. Initial operating characteristics of the GlidArc plasma reformer.

급 장치의 최대 공급 용량이 1.4 kW(교류전압: 14 kV, 교류전류: 0.1A)이다. 가스 공급라인은 메탄과 공기를 각각의 MFC(Bronkhost F201AC-FAC-22-V)에서 정밀 유량 제어하여 혼합탱크에서 혼합한 후 반응기로 공급하였다.

전이반응기는 HTS, LTS, PrOx 반응기 그리고 가스 및 수증기 공급라인으로 구성되어 있다. 가스 공급라인은 수소, 일산화탄소, 질소는 각각의 MFC에서 정밀 유량 제어되어 혼합탱크에서 혼합 후 공급하였다. 수증기 공급라인은 물탱크에서 공급된 증류수를 유량계(B-175-X052)와 메터링 밸브(metering valve)로 조절하여 기화기로 공급하도록 구성되어 있다. HTS, LTS, PrOx 반응기는 촉매 온도 균일분포를 위하여 이중관으로 설계 및 제작하였으며, 촉매에서 가스 균일분포를 위하여 다공 분배판을 설치했다. 전이 반응기의 HTS, LTS, PrOx 반응기는 각각 0.4 L로 설계되었으며 전체 전이반응기의 용적은 열교환기와 CO-shifter를 포함하여 2.8 L이다.

시스템의 측정/분석라인은 전기적 특성 측정, 온도 측정, 가스 분석으로 구분된다. 전기적 특성 측정은 고전압 프르브(Tektronix P6015A)와 전류 프르브(Tektronix A6303), 디지털 오실로스코프(Tektronix TDS 3052)를 이용하였다. 가스분석은 샘플링 라인과 가스 크로마토 그래프(SHIMAZU GC-14B) 2대로 구성되어 수소, 질소, 산소 그리고 일산화탄소 및 메탄을 동시에 분석하였다. CO는 10 ppm 이하를 측정하기 위하여 마이크로 GC(Varian MC-4900)를 이용하였다.

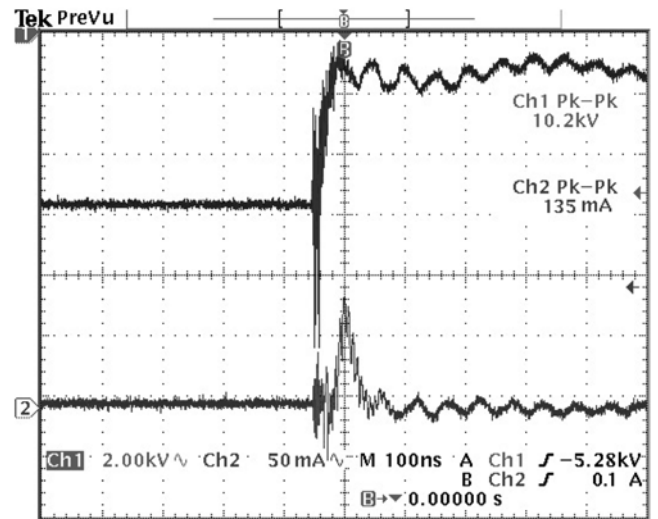


Fig. 4. Voltage and current characteristics of the GlidArc plasma reformer.

2-2. 실험 방법

플라즈마 개질기의 시동 특성을 파악하기 위해 플라즈마 반응기와 촉매반응기의 내부 온도를 측정하였다. 플라즈마 반응기는 메탄을 주입한 후 250 °C로 안정한 상태를 유지한 후, 그리고 이중관으로 제작된 촉매 반응기는 버너를 통해 내부온도를 670±10 °C까지 유지한 후 안정된 상태에서 실험을 수행하였다(Fig. 3).

전기적 특성인 입력 전압과 전류는 전원공급 장치의 전압 조절기에 의해 조절되며 이때, 전류는 일정하게 공급하였다. 고전압 프르브와 전류 프르브 그리고 디지털 오실로스코프에 의해 전압, 전류를 각각 측정하였으며, 기준 조건인 1.3 kW 일때 전압과 전류 특성은 Fig. 4와 같다.

공기 공급은 콤프레서에 의해 공급되며 서지탱크에서 압축하여 콤프레서에 의한 유량 변동을 줄였다. 응축기에서 공기의 수분을 제거한 뒤 MFC로 유량을 제어하여 혼합기로 주입되도록 구성되어 있다. 메탄 공급은 CNG 봄베에서 레귤레이터로 감압한 뒤 MFC로 유량을 제어하여 혼합기로 주입되도록 구성되어 있다. 여기서 사용된 서지탱크 및 혼합기의 용량은 각각 100 L, 2 L이다.

개질 가스에 대한 분석은 플라즈마 개질기 및 전이반응기 출구에 설치된 샘플링 포트에서 시료를 채취하였다. 냉각장치를 통과하여

Table 2. Reference of experiment and result

Standard conditions	O ₂ /C ratio	Total flow rate (l/min)	Ni-Catalyst reactor temp. (°C)	Steam flow ratio	Reformer energy density (kJ/L)
Value	0.45	14.2	672	0.8	1.1

Table 3. Experimental conditions of shift reactor

Conditions	Flow rate (l/min)	Components ratio (H ₂ :CO:N ₂)	PrOx Temp. (°C)	Steam/C	O ₂ /C
Range	13	3:2:5	130~280	2~2.9	0.25~0.38

수분을 응축시켜 제거하고 건가스 기준으로 가스크로마토 그래프에 유입하여 분석하였다. 분석은 TCD 검출기를 이용하였으며, 분석컬럼에서 수소는 molecular sieve 5A(80/100 mesh)로, 일산화탄소는 molecular sieve 13X(80/100 mesh)로, 이산화탄소, 메탄, 그리고 탄화수소계열은 HayeSep R(100/120 mesh)를 사용하였다. 온도는 반응기 내부의 플라즈마 영역, 촉매 영역 그리고 HTS, LTS, PrOx에 열전대를 설치하여 데이터 분석 장치에 의해 실시간으로 모니터링하였다.

3. 결과 및 고찰

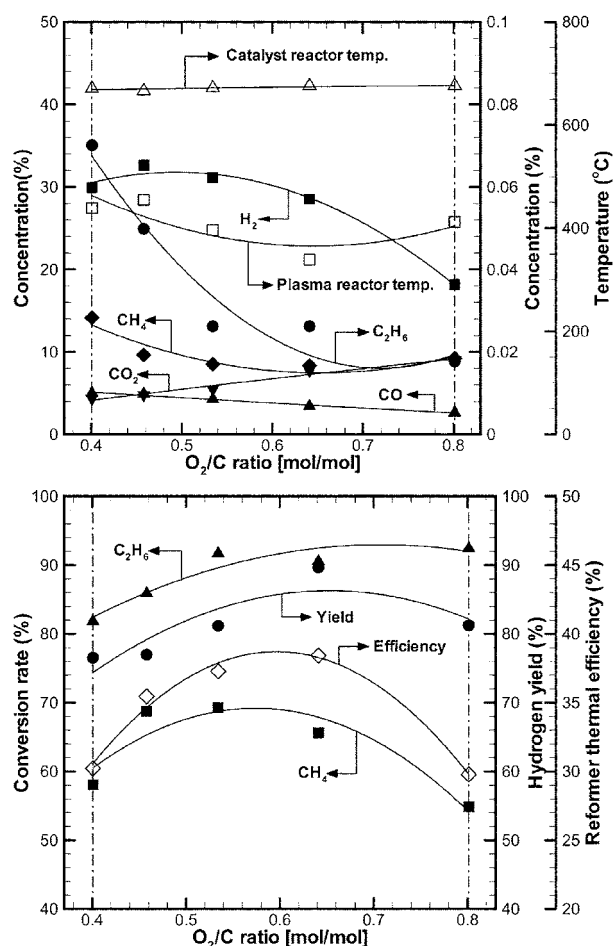
반복 예비실험을 통해 최적조건을 도출하여 기준조건으로 정하였으며 Table 2와 3에 나타냈다.

개질기에서 배출되는 개질 가스를 모사하여 전이 반응기의 각 변수 기준조건을 나타냈다.

3-1. 플라즈마 개질 실험 결과

Fig. 5는 O₂/C 비 변화에 따른 실험 결과이다. O₂/C 비를 0.4~0.8로 조절하였으며, 입력 전력은 1.3 kW로 고정하여 공급하였다. 실험결과 O₂/C 비가 0.45 일때 수소 농도는 32.6%로 최대를 나타냈으며, 일산화탄소 농도는 4.8%, 플라즈마 반응기 내부 온도는 평균 408 °C를 나타냈다. 메탄 전환율은 O₂/C 비가 0.45 일때 69.2%로 최대를 나타냈으며 O₂/C 비가 증가 할수록 높아지지만 0.6 이상에서는 메탄의 연소속도가 증가함에 따라 플라즈마 영역에서 가스 체류시간의 감소로 인하여 전환율이 감소하였다. 또한 반응식 (3)에 의해 이론적으로 O₂/C 비가 0.5를 넘게 되면 완전 산화에 가까워져서 수소 및 일산화탄소의 생성량이 줄어들며 이산화탄소의 생성량이 증가하게 된다. 수소의 선택도와 개질기 열효율은 메탄 전환율과 같은 경향을 나타냈으며 수소 선택도와 개질기 열효율은 O₂/C 비가 0.63 일때 89.6%, 38.4%로 가장 높게 나타났다.

Fig. 6은 유량 변화에 따른 실험 결과이다. 총유량을 4.9~29.2 l/min로 조절하여 주입하고 O₂/C 비와 입력 전력을 0.45, 1.3 kW로 고정하였다. 실험결과 총 유량이 증가할수록 수소의 농도는 점차적으로 최대 44%까지 증가하였으며, 일산화탄소 농도는 6.3%에서 8.5%로 증가하였다. 플라즈마 반응기 내부 온도는 총 유량이 증가할수록 감소하였으며 29.2 l/min 일때 325 °C를 나타냈다. 플라즈마는 주입 유량에 따라 방전 특성이 달라진다. 낮은 유량에서는 방전이 전극 하단에서 형성되어 부채꼴 전극을 타고 길게 형성되며 유량이 증가 할수록 방전의 시작점이 상승하며 플라즈마가 짧게 형성된다. 현재 플라즈마 반응기의 온도 측정 지점이 전극의 상단에서 5cm 정도 떨어진 지점이므로 유량이 증가 할수록 플라즈마 방전 영역의 위치가 점차적으로 낮게 형성되어 온도가 감소하는 측정결과를 나타냈다. 11 l/min 일때 수소 농도는 18.4%, 일산화탄소 농도는

Fig. 5. The effect of the various O₂/C rates.

12.1%, 반응 온도 269 °C를 나타냈다. 메탄 전환율은 29.2 l/min 일때 88.1%로 최대를 나타냈으며 수소 수율은 78~84.5%로 평균 81.3%를 나타냈다. 개질기 열효율은 총유량이 14.2 l/min 일때 49.8%를 나타냈다.

Fig. 7은 촉매 반응온도에 따른 실험 결과이다. O₂/C 비는 0.45이며 총유량이 4.99 l/min가 되도록 주입하였다. 입력 전력 1.3 kW로 고정하였으며 플라즈마 반응기의 내부 온도는 평균 487 °C를 나타냈다. 실험결과 촉매 반응기의 내부 온도가 증가할수록 수소 농도는 최대 36.2%를 나타냈다. 촉매 반응기의 온도가 300 °C에서는 촉매가 활성화되기 위한 온도 조건에 미치지 못하여 개질 결과, 평균 21%의 수소 농도를 보이고 있다.

Fig. 8은 촉매 반응기에 담체만을 넣어 니켈 촉매의 영향에 대한 비교 결과이다. O₂/C 비를 0.4~0.8로 조절하였을 때 주입공기량은 3.4 l/min로 고정하였다. 그리고 메탄 주입량은 0.9~1.8 l/min

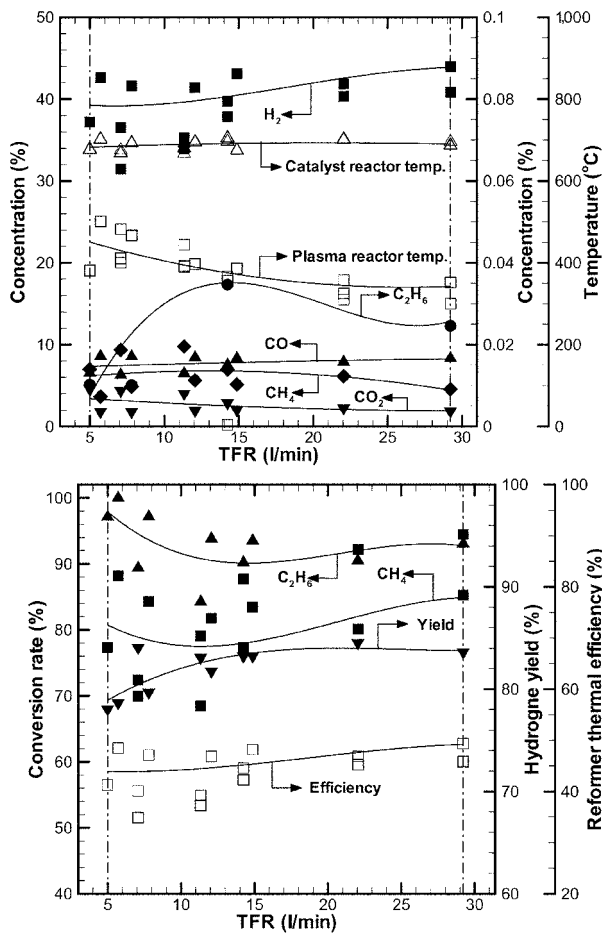


Fig. 6. The effect of the various flow rates.

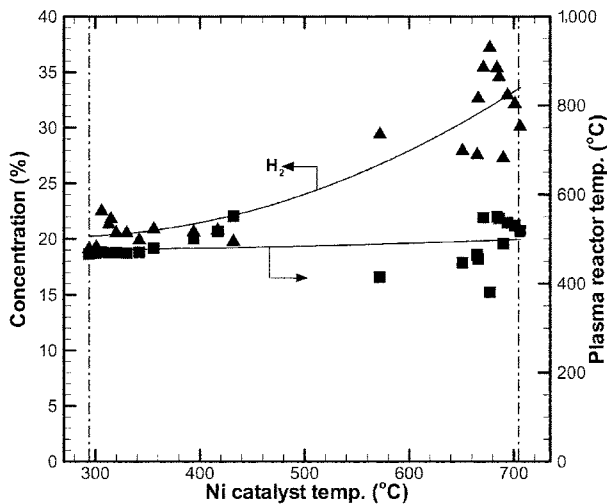


Fig. 7. The effect of catalyst reaction temperatures.

로 조절하였다. 입력 전력은 1.3 kW로 고정하여 공급하였다. 실험결과 촉매와 촉매가 없는 경우 O_2/C 비가 0.45일 때 수소 농도가 32.6%, 26.1%를 나타냈으며 촉매에 의해 20% 증가율을 나타냈다. 메탄 전환율과 수소 선택도는 촉매와 촉매가 없는 경우를 비교하였을 때 촉매의 반응에 의하여 31%, 25%의 증가율을 나타냈다.

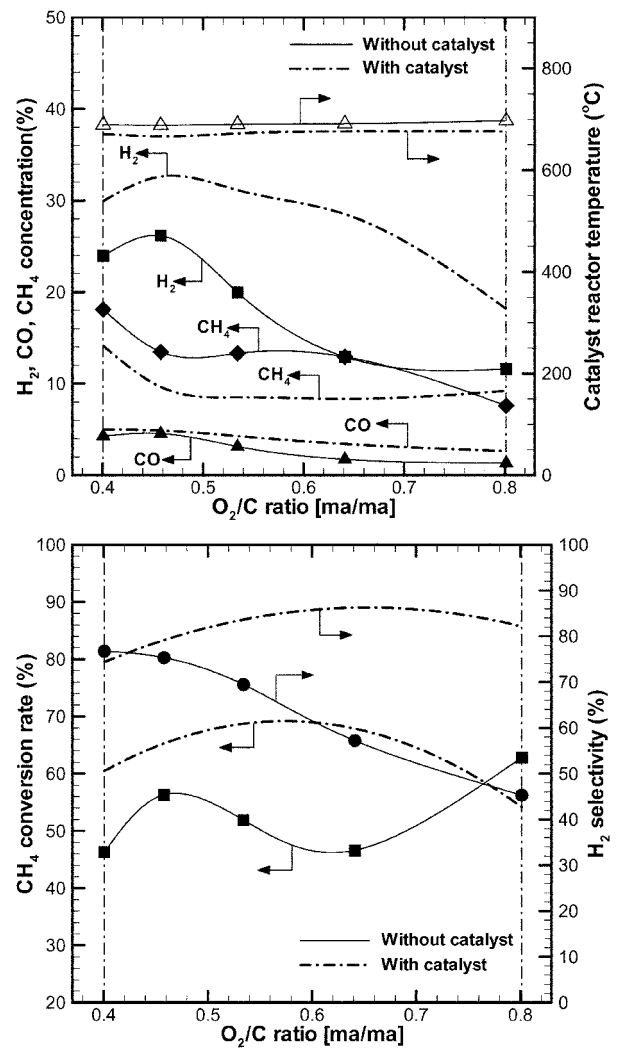


Fig. 8. The effect of the case with and without a catalyst.

3-2. 전이 반응기 실험 결과

Fig. 9에 전이 반응기의 구성 중 마지막의 PrOx 반응 촉매에 온도 운전범위 130~280 °C에서 온도변화 따라서 수소와 일산화탄소 농도변화를 나타냈다. 이때 고온전이 및 저온전이 반응 촉매에 온 전 온도는 440, 350 °C로 일정하게 유지하였다.

플라즈마 개질기로부터 발생하는 가스를 모사하여 주입 가스량은 13 l/min이고, 가스조성비는 $H_2:CO:N_2=3:2:5$ 로 하였다. CO-shift에 주입되는 Steam/C 비를 2.2로 고정하고 PrOx 반응기에 주입되는 O_2/C 비율을 0.25로 하였다. 일산화탄소는 온도 증가에 따라 감소 하였으며, 수소의 농도는 평균 38%를 나타냈다. 특히 PrOx의 반응 온도가 260 °C 일때 10 ppm 이하의 일산화탄소 농도를 나타내고 있다. 하지만 사용된 Ru 촉매 반응 온도는 저온에서 반응이 용이하며 200 °C 이상에서는 메탄 생성 반응 및 촉매의 열화 등의 문제가 발생한다. 제안된 전이 반응기에서는 열교환기 등을 이용하여 PrOx의 반응 온도를 낮추어야 한다.

반응식 (4), (5)에서 일산화탄소 전환율은 수증기 주입량과 PrOx 반응기에서 산소의 주입량에 따라서 변화 되는 것을 알 수 있다. 따라서 Fig. 9에 반응식 (5)에 따른 결과에 대해 나타냈다. 전이 반응기에 주입되는 모사 개질 가스 주입량은 13 l/min이며, $H_2:CO:N_2$ 의 비

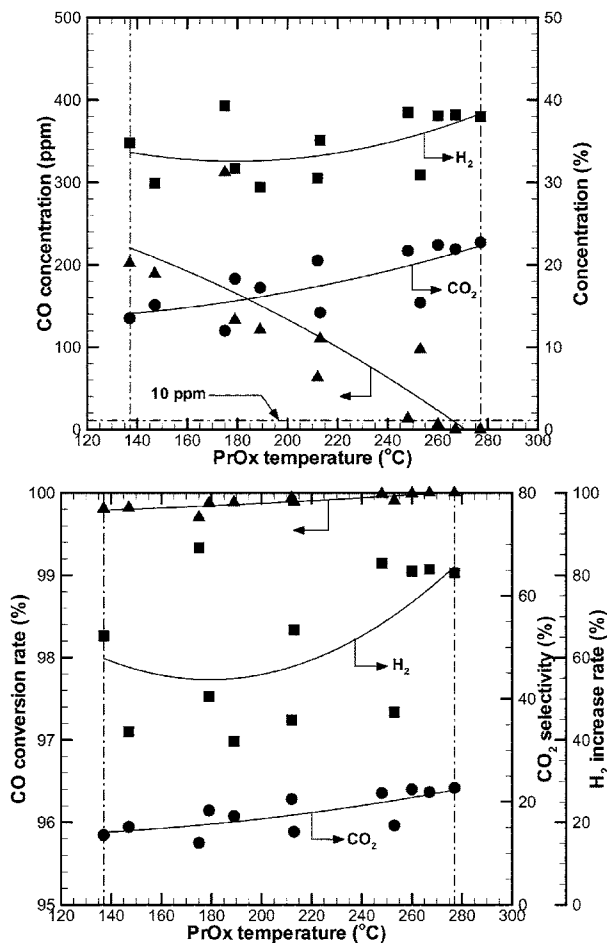


Fig. 9. Concentrations for the PrOx as a function of temperature.

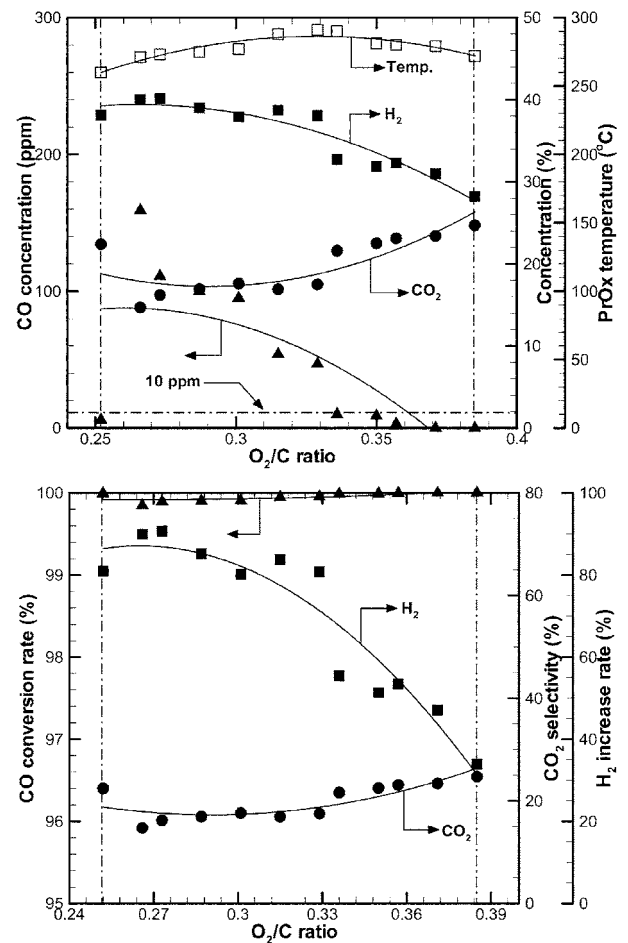


Fig. 10. Composition change as a function of O_2/C ratio in the PrOx.

율은 3:2:5이고, 이때 주입되는 steam/C ratio는 2.2로 고정하였다. PrOx 반응기에 주입되는 O_2/C 비율은 0.25~0.38 범위에서 변화하였다.

Fig. 10에서 보면 일산화탄소와 수소의 농도는 공기 주입량 증가에 따라서 감소되었다. 이는 반응식 (5)에 의해 일산화탄소의 농도는 25%까지 증가하였다. 실험결과 O_2/C 비율이 0.35 이상 증가하면 반응기 출구에서 최종 일산화탄소 농도를 10 ppm 이하로 줄일 수 있다. 하지만 수소의 농도가 급격히 감소함을 알 수 있으며, 일산화탄소 농도의 저감을 동시에 고려할때 O_2/C 비율이 0.35 일때 효율적인 결과를 나타냈다.

전이 반응에서 수증기 주입량 변화에 따라 수소 농도와 일산화탄소 농도 변화는 Fig. 11에 나타났다. 모사 개질 가스 주입량은 13 l/min이며 $H_2:CO:N_2$ 의 비율은 3:2:5이고, 위의 실험결과 PrOx 반응기에 주입되는 O_2/C 비율을 0.35로 고정하였다. 수증기 주입은 CO-shift에서 주입하였으며, steam/C비를 2~2.9 범위에서 변화하였다. Fig. 9에서 steam/C비가 2.7 이상에서 최종 일산화탄소 농도를 10 ppm 이하로 감소하는 결과를 나타냈다. 반응식 (4)에 의해 일산화탄소는 24%로 증가하였으며, 수소의 농도는 평균 38%를 나타냈다. 특히 수소의 증가율은 Steam/C비가 2.9 일 때, 최대 92%를 나타냈다. 따라서 기화기 부하와 일산화탄소 농도 저감을 고려하여 CO-shift에 주입되는 steam/C비가 2.9 일 때 가장 높은 효율을 나타냈다. 이때의 PrOx 반응 온도는 230°C로서 다른 연구논문의 결과와 비교할 때 80°C~100°C가 높은 반응 온도에서 10 ppm 이하의 일산화탄소 농도가 나타나는 것을 알 수

있었다. 이는 반응기 내부에서 산소와 개질 가스의 혼합율이 낮아 국부적으로 발생하는 발열 현상에 의한 문제로 판단된다.

4. 결 론

연구에서는 저온 플라즈마와 촉매를 이용하여 메탄으로부터 고농도 수소를 포함한 합성가스 생성에 대한 특성을 파악하였다.

기준 조건에서 메탄 개질반응 결과로 생성된 합성가스 농도는 수소 41%, 일산화탄소 4.2%, 이산화탄소 4.3%, 에탄 0.05%이다. 결과에서 알 수 있듯이 합성가스의 대부분이 수소이며, H_2/CO 비는 9.7이다. 또한 반응가스인 메탄 전환율은 69.2%를 나타냈다.

변수별 연구를 통한 개질 특성을 파악한 결과 O_2/C 비가 0.45일 때 가장 높은 수소 농도를 나타냈으며, 전체 유량과 촉매 반응기의 온도가 증가할수록 수소의 농도는 증가하는 결과를 나타냈다. 촉매를 담지하지 않은 담체($\gamma-Al_2O_3$)에 대하여 비교한 결과 수소 농도, 메탄 전환율, 개질기 열효율이 각각 20%, 31%, 25%가 증가한 결과를 나타냈다. 온도에 따라 촉매의 활성도가 증대되어 수소 농도가 촉매를 추가하지 않은 경우보다 증가된 결과를 나타냈다.

플라즈마 개질기를 통하여 개질된 가스를 모사하여 전이 반응 실험을 수행하였다. 일산화탄소 농도를 10 ppm 정도로 저감을 위하여 실험장치의 최적 운전 조건은 모사 개질 가스 조성비가 $H_2:CO:N_2=3:2:5$ 이며, 개질 가스 유량은 13 l/min, 그리고 수증기와 개질 가스

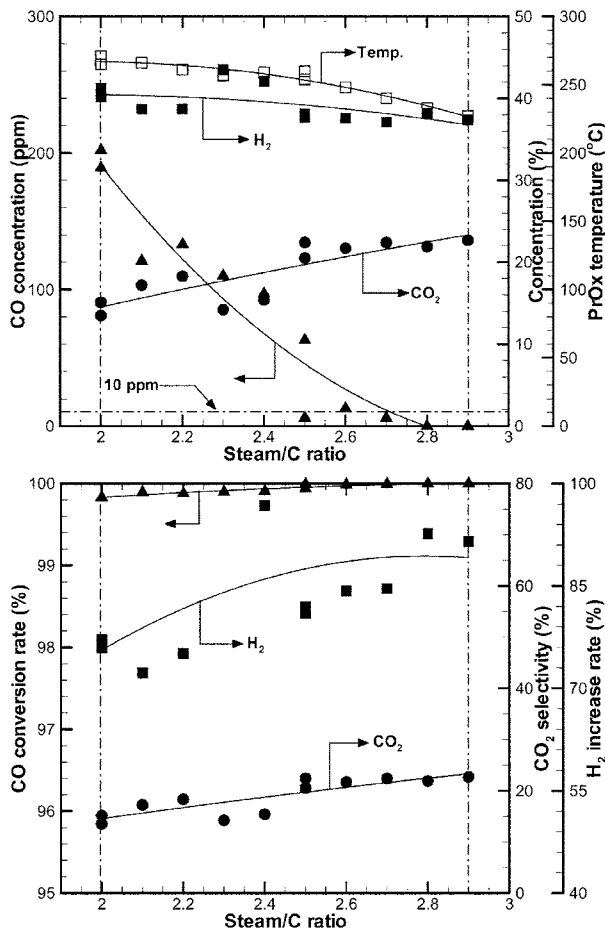


Fig. 11 Composition change as a function of Steam/C ratio in the PrOx.

비율이 2.9 일때 었다.

전이 반응 실험에서는 PrOx 촉매의 온도 변화 따른 일산화탄소 농도 변화실험을 수행하였으며, 최적 활성온도는 260 °C 이상이였다. 그러나 실험결과와의 활성 온도에서는 개질 가스중 수소와 일산화탄소에 의한 메탄화 반응으로 메탄이 생성되고 고온에 의한 촉매 열화 현상이 나타날 수 있다. 따라서 낮은 온도에서 반응이 이루어 지도록 O₂/C, steam/C 변화 실험결과, O₂/C 비율이 0.35 일때, steam/C 비가 2.9 일때 PrOx의 반응 온도는 230 °C를 나타냈다. 이때의 모

사 개질 가스로부터 전이 반응기를 거친 가스 조성은 H₂ 38%, CO <10 ppm 그리고 이산화탄소 21%의 결과를 나타냈다. 본 연구 결과, 전이 반응기에서의 열교환 및 PrOx 반응기에 주입되는 공기와 의 혼합에 대한 보완이 필요하다.

감 사

이 논문은 2007년도 조선대학교 학술연구비의 지원을 받아 연구 되었음.

참고문헌

1. Iulian, R. and Jean-Marie, C., "On a Possible Mechanism of the Methane Steam Reforming in a Gliding Arc Reactor," *Chemical Engineering Journal*, **91**(1), 23-31(2003).
2. Yang, J. I. and Kim, J. N., "Production of Hydrogen in the Steam-Methane Reforming Reaction Using Sorption Enhanced Reaction Process," *Korean Chem. Eng. Res.*, **41**(4), 439-444(2003).
3. Shigeru, F., Hajime, K. and Gurusamy, A., "Roles of CO₂ and H₂O as Oxidants in the Plasma Reforming of Aliphatic Hydrocarbons," *Catalysis Today*, **115**(1-4), 211-216(2006).
4. Nishimoto, H., Nakagawa, K., Ikenaga, N., Nishitani-Gamo, M., Ando, T. and Suzuki, T., "Partial Oxidation of Methane to Synthesis Gas over Oxidized Diamond Catalysts," *Applied Catalysis A: General*, **264**(1), 65-72(2004).
5. Lee, D. H., Lim, K. T., Cha, M. S. and Song, Y. H., "Optimization Scheme of a Rotating Gliding arc Reactor for Partial Oxidation of Methane," *Pro. Com. Inst.*, **31**(2), 3343-3351(2007).
6. Rostrup-Nielsen, D. J. R., "Coking on Ni Catalysts for Steam Reforming of Hydrocarbons," *J. Catal.*, **33**(2), 184-201(1974).
7. Pasquale, C. and Fortunato, M., "Hydrogen Production by Catalytic Partial Oxidation of Methane and Propane on Ni and Pt Catalysts," *Int. J. Hyd. Ene.*, **32**(1), 55-66 (2007).
8. Zhigang, L., Renxian, Z. and Xiaoming, Z., "Comparative Study of Different Methods of Preparing CuO-CeO₂ Catalysts for Preferential Oxidation of CO in Excess Hydrogen," *J. Molecular Catalysis A: Chemical*, **267**(1-2), 137-142(2007).
9. Kim, D. K., Shin, C. S. and Shin, C. H., "Low Temperature CO Oxidation over Co₃O₄/γ-Al₂O₃ Catalyst," *Korean Chem. Eng. Res.*, **42**(3), 371-374(2004).