

# CFD를 이용한 멤브레인 반응기 해석

박정수, 서정철\*, 신동일\*\*, 윤인섭

서울대학교 응용화학부

\*한국가스공사 연구개발원

\*\*명지대학교 화학공학과

## Analysis of a membrane reactor using CFD

Jeong Su Park, Jung Chul Suh\*, Dongil Shin\*\* and En Sup Yoon

School of Chemical Engineering, Seoul National University

\*Korea Gas Corporation R&D Division

\*\*Department of Chemical Engineering, Myongji University

### 1. 서론

본 연구에서는 수성가스반응이 일어나는 막반응기를 CFD(Computational Fluid Dynamics)기술을 적용하여 해석하였다. 해석의 기준값으로 열역학적 평형전환율 및 동적 평형전환율과 비교하여 막반응기 사용시 성능이 향상된 점을 확인하였다. 이러한 연구를 바탕으로 현재 공장에서 수행되는 단열과정에 대한 복잡하고 다양한 종류의 촉매 멤브레인 반응기 최적설계 및 문제해결에 기여할 수 있을 것이다.

### 2. 이론

#### 2.1 수학적 모델링

고려하고자 하는 관형 촉매 멤브레인 반응기에 대한 그림을 대략적으로 나타내면 Fig. 2.1과 같으며 수소투과모사모델 개념의 멤브레인 부분은 Fig. 2.2와 같다

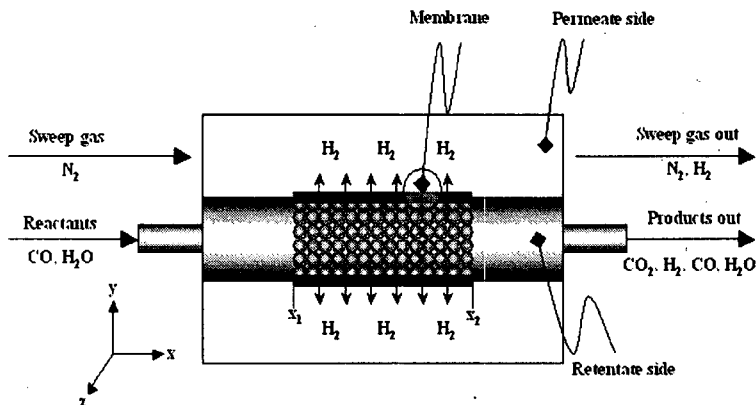


Fig. 2.1 Schematic diagram of catalyst membrane reactor

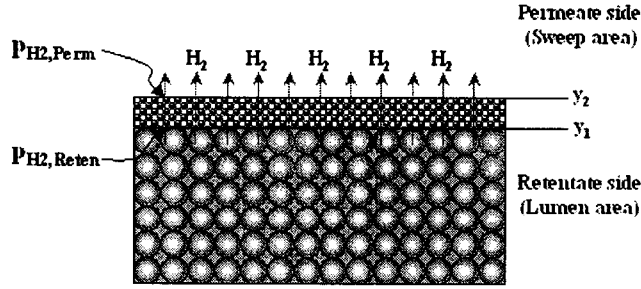


Fig. 2.2 Membrane part of the catalyst membrane reactor

### 2.2 연속방정식 (Continuity equation)

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i) = S_m \quad (2-1)$$

$$S_m = S_{H_2, Perm} \quad \text{at } y = y_2$$

$$S_m = S_{H_2, Reten} \quad \text{at } y = y_1$$

### 2.3 운동량방정식 (Momentum equation)

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i u_i) = -\frac{\partial P}{\partial x_i} + \frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j} + \rho g_i + S_{pi} \quad (2-2)$$

$$S_{pi} = -\left( \frac{\mu}{\alpha} u_i + C_2 \frac{1}{2} \rho u_i^2 \right) \quad (2-3)$$

그리고 충전층의 길이에 따른 압력강하로 표시되는 Ergun 식은 다음과 같다.

$$\frac{|\Delta p|}{L} = \frac{150\mu}{D_p^2} \frac{(1-\epsilon)^2}{\epsilon^3} v_\infty + \frac{1.75\rho}{D_p} \frac{(1-\epsilon)}{\epsilon^3} v_\infty^2 \quad (2-4)$$

### 2.4 투과성분방정식 (Permeate component equation)

#### ■ Hydrogen transport (Retentate side)

$$u \frac{\partial(\rho m_{R,H_2})}{\partial x} + v \frac{\partial(\rho m_{R,H_2})}{\partial y} + w \frac{\partial(\rho m_{R,H_2})}{\partial z} = \frac{\partial(J_{x,R,H_2})}{\partial x} + \frac{\partial(J_{y,R,H_2})}{\partial y} + \frac{\partial(J_{z,R,H_2})}{\partial z} + R_{H_2} + S_{H_2,Reten}$$

$$S_{H_2,Reten} = -C_{SV,Reten} \frac{Pe}{I} M_{W,H_2} \left( \sqrt{p_{H_2,Reten}} - \sqrt{p_{H_2,Perm}} \right) \quad (2-5)$$

## ■ Hydrogen transport (Permeate side)

$$u \frac{\partial(\rho m_{P,H_2})}{\partial x} + v \frac{\partial(\rho m_{P,H_2})}{\partial y} + w \frac{\partial(\rho m_{P,H_2})}{\partial z} = \frac{\partial(J_{x,P,H_2})}{\partial x} + \frac{\partial(J_{y,P,H_2})}{\partial y} + \frac{\partial(J_{z,P,H_2})}{\partial z} + S_{H_2,Perm}$$

$$S_{H_2,Perm} = C_{SV,Perm} \frac{Pe}{I} M_{W,H_2} \left( \sqrt{p_{H_2,Reten}} - \sqrt{p_{H_2,Perm}} \right) \quad (2-6)$$

## 2.5 수성가스전환반응 kinetic 모델

Langmuir-Hinshelwood's kinetic expression[30]:

$$r = \frac{k K_{CO} K_{H_2O} \left( p_{CO} p_{H_2O} - \frac{p_{CO_2} p_{H_2}}{K_{eq}} \right)}{\left( 1 + K_{CO} p_{CO} + K_{H_2O} p_{H_2O} + K_{CO_2} p_{CO_2} \right)^2} \times \rho_{bulk} \frac{1}{60000} \quad (2-7)$$

여기에  $r$ 는 반응 속도 [ $kg - mole / m^3 \cdot s$ ]이며,  $k$ 는 속도상수 [ $mol / g - cat \cdot min$ ]이다.  $K_{CO}$ ,  $K_{H_2O}$ ,  $K_{CO_2}$ 는 각각 CO, H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>의 흡착평형상수이며,  $K_{eq}$ 는 평형상수를 나타낸다.  $p_{CO}$ ,  $p_{H_2O}$ ,  $p_{H_2}$ ,  $p_{CO_2}$ 는 각 성분의 분압 [ $Pa$ ]이며,  $\rho_{bulk}$ 는 촉매층이 있는 Bulk의 밀도 [ $g - cat / cm^3$ ]이다.

## 2.6 경계조건 (Boundary condition)

모델에 입력되는 경계조건들은 모두 모사경우들에 대한 조건들과 동일하게 입력되었다. 운전온도 범위는 595 ~ 800[K]이고, 압력범위는 절대압력으로 1 ~ 10[atm], 반응영역(Lumen 영역)에서의 Time Factor 범위는 4,140 ~ 15,450[g-cat·min/g-mole CO], Sweep영역에서의 유량유속범위는 0 ~ 436 [ml/min]으로 하였다. 그리고 사용된 모사조성조건은 건조성으로 CO 32%, CO<sub>2</sub> 12%, H<sub>2</sub> 4%, N<sub>2</sub> 52%이며 H<sub>2</sub>O/CO비율은 1.1이다.

## 2.7 CFD 해석

위와 같은 수성가스 막반응기에 대한 모델식을 CFD기술을 적용하여 해석하였다. 유체에 대한 가정으로 비압축성이라고 하였으며 운동량, 질량, 에너지, 성분 지배방정식에 대한 순차풀이 기본으로 하는 solver를 사용하였다.

### 3. 결과

#### 3.1 촉매 반응 해석

수성가스전환반응에 대한 반응 속도식인 Langmuir-Hinshelwood 모델식과 Temkin 모델식에 대해서 3차원적으로 고정층 반응기를 모사하였으며, HYSYS를 이용한 모사결과(simul. Data (HYSYS)) 및 문헌치[5]와 본 연구에서 수행한 모사한 결과(simul-1 (L-H:FLUENT))와 일치하는 값을 가지는 것을 모사결과인 Fig. 3.1에서 알 수 있다.

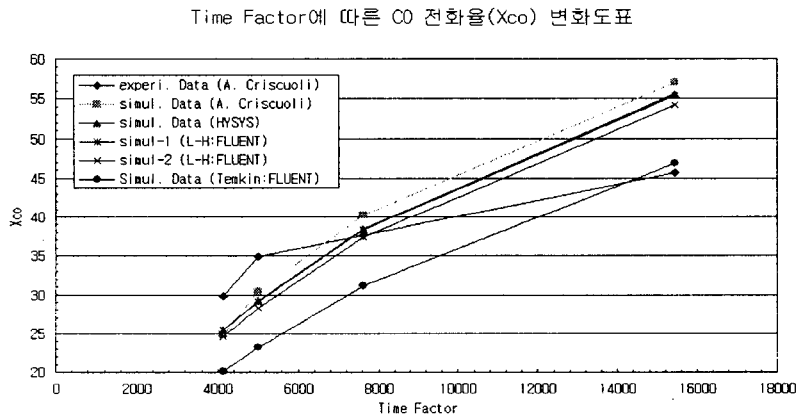


Fig. 3.1 CO Conversion versus Time factor for the reaction test

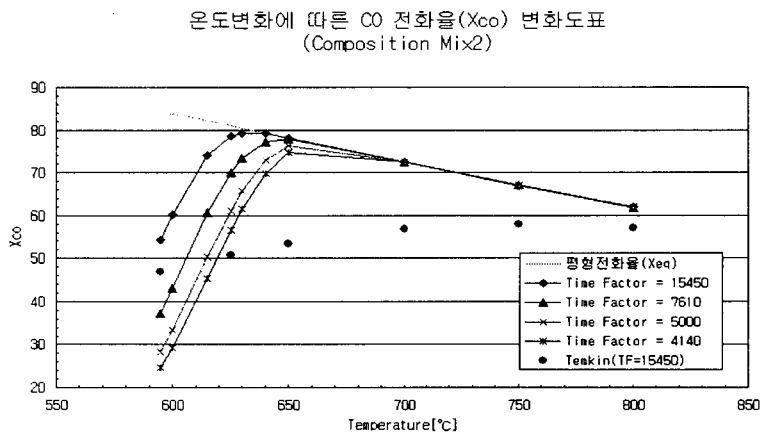


Fig. 3.2 Conversion versus Temperature for the optimal temperature point

수 있다. 이러한 결과는 문헌에서 밝힌 바와 같으며 이는 CO의 유속 감소로 인한 Residence time의 증가에 기인한 것이다. 반면에 Time factor가 낮은 경우에는 CO 유량유속이 빨라지게 되어 Residence Time이 작아지게 되며 이에 CO전화율이 작게 나오게 되는 것이다. 그리고 Time factor가 15450인 경우 640[K]이상 올리게 되면 역수성가스전환반응이 일어나게 되어 오히려 전화율이 감소함을 알 수 있다.

### 3.3 촉매 멤브레인 반응 해석

촉매반응기에 멤브레인을 이용한 촉매 멤브레인 반응기의 모사를 앞에서 구한 최적 조건에서 모사하였으며 그 결과는 Fig. 3.3과 같다

Time factor에 따른 CO 전화를 변화 도표

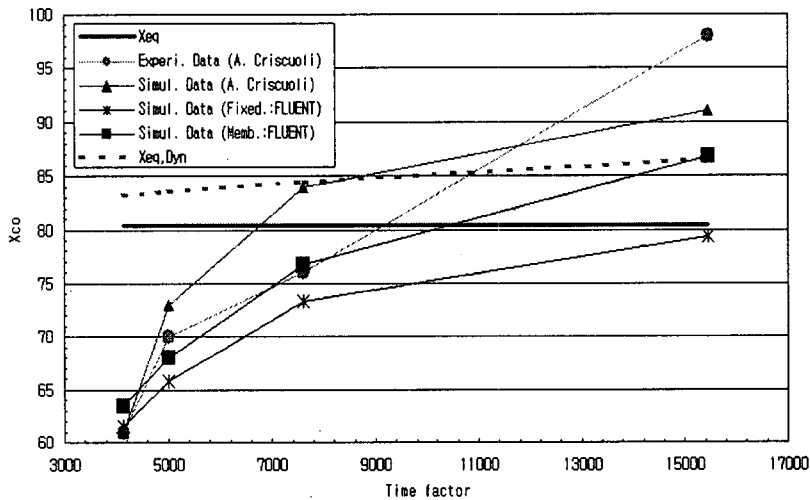


Fig. 3.3 comparison of CO conversion between literature and simulation

Fig. 3.3의 결과는 Time factor[g-cat·min/g-mole CO]가 대략 10,000근처에서 CO 전화율에 있어 5%정도의 전화율 향상을 가져왔으며 평형전화율을 극복하기 시작하였다. 또한 최적의 운전조건인 Time factor가 15,450인 경우에는 멤브레인의 효력은 더욱 발휘하여 약 7%가량의 전화율 향상을 가져왔다. 멤브레인을 이용한 촉매반응기에서의 활용은 순도 높은 반응물을 얻고자 할 때 그리고 어느 한 반응물을 완전히 반응시키고자 할 때 사용될 수 있는 유용성 및 본 연구에서 모델된 멤브레인 모델을 검증할 수 있었다.

### 감사

본 연구는 교육인적자원부의 Brain Korea 21의 지원에 의한 것입니다.