

KIER 수소충전소 구축 현황

서 동주¹⁾, 서 유탉¹⁾, 서 응석¹⁾, 박 상호¹⁾, 노 현석¹⁾, 정 진혁²⁾, 윤 왕래¹⁾

Present Status of Hydrogen Refueling Station in KIER

Dong Joo Seo, Yutaek Seo, Yong Seog Seo, Sang Ho Park, Hyun-Seog Roh,

Jin Hyeok Jeong, and Wang Lai Yoon

Key words : Hydrogen refueling station (수소충전소), Fuel cell vehicle (연료전지 자동차), On-site production(현장 생산), Natural gas (천연가스), Steam reforming (수증기 개질)

Abstract : 수소의 소규모 분산 생산 기술은 본격적인 수소 인프라가 도입되기 전에 연료전지 자동차의 수소 충전용이나 분산 발전형 연료전지의 수소 공급을 위해 필요하다. 생산 용량은 수소 기준으로 20~100 Nm³/hr 정도로 현재로서 천연가스의 수증기 개질법이 가장 경제적인 공정으로 알려져 있다. 소규모 생산에 따른 열효율 저하를 줄이기 위해 단위 공정들이 통합된 콤팩트 개질 시스템의 개발이 필요하다. 연료전지 자동차용 수소 인프라 조기 구축을 위하여 수소충전소 구축과 국산화 천연가스 수증기 개질기 개발을 병행하여 진행하였다. 수소충전소 구축 부분은 충전소 부지 확보, 건물 건축, 각종 유틸리티 설치의 토목 부분과 천연가스 개질형 수소 제조 유닛 설치, 수소 압축, 저장, 디스펜싱 시스템 설치를 포함하고 있으며 고압 설비에 대한 인허가 대응 및 안전 대책 작업도 진행하였다. 구축된 수소충전소는 향후 연료전지 자동차 연계 실증 프로그램에 활용할 수 있다. 국산화 핵심 기술 개발을 위하여 열 및 시스템 통합 설계에 의해 천연가스 수증기 개질기를 제작하고 내부 열교환 구조에 따른 개질기의 성능을 평가하였다. 개발된 개질기는 개질온도 720℃, 수증기 대 카본 비 2.7의 운전조건에서 23 Nm³/h 이상의 수소 생산이 가능 하였으며 73% 이상의 개질 효율을 나타내었다. 개발된 천연가스 수증기 개질기는 향후 수소 정제용 PSA(Pressure Swing Adsorption) 시스템과 연계하여 수소충전소 국산화 엔지니어링 설계 패키지 개발의 핵심 기술로 사용할 계획이다.

Nomenclature

ΔH_{298}° : enthalpy of reaction at 298K, kJ/mol

η : reforming efficiency

Subscript

NG : natural gas

LHV : lower heating value

수소를 에너지 매개체로서 이용하기 위해서는 수소에너지의 제조, 저장, 수송, 이용 기술 전반을 포함하는 수소에너지 시스템 구축이 필요하다.

특히 정지형 연료전지의 수소 공급과 자동차용 연료전지의 보급을 위해서는 수소 공급 인프라의 구축이 병행되어야 한다.^{(1), (2)} 현재의 수소 제조법 중에서 화석 연료, 특히 천연가스 수증기 개질법에 의한 수소 생산이 가장 가격 경쟁력이 있는 것으로 알려져 있다. 수소 에너지의 초기 도

1. 서 론

화석연료의 가채량 감소와 지속적인 에너지 사용량 증가에 따른 에너지 자원의 확보 및 온실가스 배출 억제를 위한 청정 에너지로서 수소 에너지의 개발이 가속화 되고 있다. 일상 생활에서

-
- 1) 한국에너지기술연구원 수소연료연지연구부
E-mail : djseo@kier.re.kr, vtseo@kier.re.kr,
ysseo@kier.re.kr, psh@kier.re.kr,
hsroh@kier.re.kr, wlyoon@kier.re.kr
Tel : (042)860-3661 Fax : (042)860-3309
 - 2) 경북대학교 화학공학과
E-mail : jhjeong@kier.re.kr
Tel : (042)860-3669 Fax : (042)860-3309

입 단계에서는 대용량 중앙 집중식 생산보다 소규모 현장 생산이 필요하다.

본 연구에서는 KIER의 수소충전소 구축 현황을 소개하고 수소충전소의 수소 제조 장치로 이용 가능한 20 Nm³/h 용량의 천연가스 수증기 개질기의 성능 평가를 수행하였다.

2. 수소충전소 구축

2.1 공정 구성

KIER 수소 충전소는 천연가스 개질형 수소 제조장치, 수소 압축기, 고압 저장조, 순위제어 판넬, 수소충전기(dispenser)로 구성하였다. Fig. 1은 공정 구성 개략도이다. 원료로 사용하는 천연가스는 도시가스 배관에서 분기한 후 9 bar까지 승압하여 공급하였다. 공급된 도시가스는 수증기 개질 반응이 진행되는 리포머를 통하여 수소가 풍부한 개질 가스로 전환된다. 생성된 개질 가스는 수소 수율을 높이기 위해 전화 반응기(shift reactor)를 거친 후 냉각되고 기-액 분리기에서 기상 생성 가스만이 PSA (pressure swing adsorption)로 공급된다. PSA는 수소를 제외한 불순물을 제거하여 고순도 수소를 연속 생산한다. 생산된 수소는 수소 전용 다이아프램 압축기를 사용하여 최대 400 bar로 압축 저장된다. 고압 저장조는 3단 케이스케이드 방식으로 운영되고 이를 위하여 순위제어 판넬을 설치하였다. 수소충전기와 순위제어 판넬의 연동에 의해 최적 충전 속도를 유지하도록 구성하였다. 수소충전기는 차량 탑재 용기에 최대 350 bar까지 충전이 가능하도록 설정되었다.

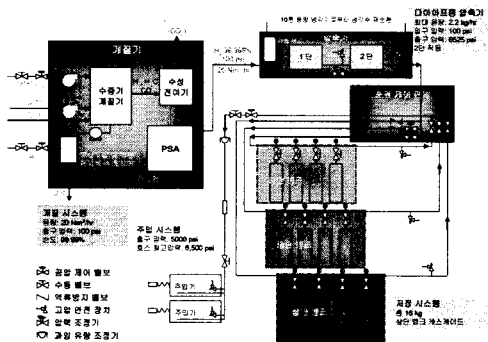


Fig. 1 천연가스 개질형 수소충전소 공정 구성

2.2 수소충전소 안전 대책 및 인허가

수소충전소는 고압의 가연성 기체를 취급하는 시설이므로 설비의 안전성에 대한 충분한 고려가 필요하다. 과압, 이상 과열, 수소 누설에 대해 자동 섯다운이 이루어지도록 제어 시스템을 구성하였고 긴급 정지 버튼을 수소충전기 본체와 충전소 외벽에 별도로 설치하여 긴급 상황에서 수동으로 설비를 정지하고 안전 상태로 전환 가능하도록 하였다. 그 밖의 안전과 관련한 시설 기준과 기술 기준은 국내 법규상 요구 사항을 모두 반영하였다. 수소충전소는 고압가스안전관리법(이하 고법)의 적용을 받는 시설이며 고압가스 일반 제조(충전)시설에 해당한다. 상세 사항은 2005년에 고시된 산업자원부 특례에 의하여 CNG 충전소의 시설 기준과 기술 기준을 준용하도록 하고 있다. 이에 따라 인허가 작업을 진행하였고 완성검사를 통과 하였다. 전체 인허가 진행 과정을 Fig. 2에 나타내었다.

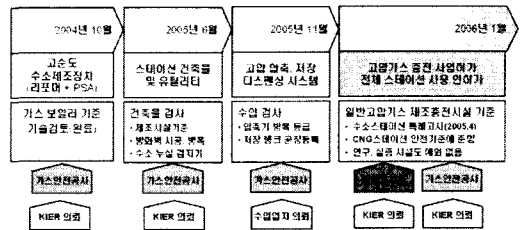


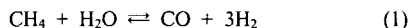
Fig. 2 수소충전소 인허가 과정

3. 수소충전소용 천연가스 수증기 개질기 개발

3.1 개질기 열 및 시스템 통합 설계

수소충전소 인프라 구축과 병행하여 현장 생산 방식의 수소 제조 공급을 위한 천연가스 수증기 개질기를 개발하였다. 초기 실증 단계에서 수소충전소는 20-100 Nm³/h 정도의 수소 생산량으로 주로 운영되고 있으며 이러한 소규모 시스템은 고효율 설계와 장치 컴팩트화가 필요하다.

수증기와 메탄은 Ni/Al₂O₃ 촉매 상에서 수소를 포함하는 기체로 전환되며 이러한 수증기 개질에 관여하는 주요 반응은 다음과 같이 나타낼 수 있다.^{(3), (4)}



$$\Delta H_{298}^{\circ} = 206 \quad (\text{kJ/mol})$$



$$\Delta H_{298}^{\circ} = -41.1 \text{ (kJ/mol)}$$

반응식 (1)은 수증기 개질 반응에 해당하며 반응식 (2)는 수성가스 전화 반응을 나타낸다. 실제 반응은 (1)식과 (2)식의 반응이 혼합된 형태로 진행되며 전체 반응은 흡열 반응이다.

수소 생산 용량을 기준으로 20 Nm³/h 규모의 동심관형 수증기 개질 반응기를 설계, 제작하였다. 다중관을 중첩 구조로 배치하여 원활한 내부 열교환을 유도하였으며 제작의 단순화를 고려하여 설계하였다.

두 종류의 열 및 시스템 통합 설계 구조를 개질기에 채택하여 prototype-1, prototype-2로 설정하였다. Fig. 3에 prototype-1 개질기의 열교환 구조를 개략도로 나타내었다. 연소 챔버(combustion chamber)에는 가스 버너를 부착하여 반응열을 공급하도록 하였다. 촉매층을 가열하고 연소 챔버에서 빠져나온 연소 배가스는 개질용 반응 원료를 예열하도록 하였다. 예열된 개질용 반응 원료는 촉매층을 통과하면서 개질 생성 가스로 전환되고 촉매층 외곽을 타고 돌아 나오도록 하여 인접한 촉매층에 대해 보온 및 열보상의 역할을 하도록 한다.

Fig. 4는 prototype-2 개질기의 열교환 구조이다. prototype-2는 제작 편의성을 위하여 prototype-1의 구조를 단순화한 구조를 채택하였다. 구조 단순화에 의해 개질기 크기를 감소시켜 컴팩트화가 가능하다. prototype-2는 개질 촉매층과 연소 배가스 배출 유로 사이에 개질 반응 원료 예열층을 두고 있는 것이 특징이다.

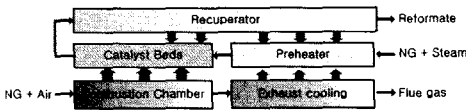


Fig. 3 prototype-1 개질기 열교환 구조

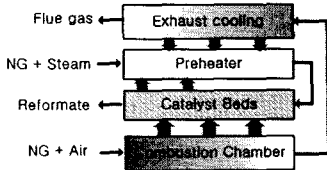


Fig. 4 prototype-2 개질기 열교환 구조

3.2 개질기 성능 측정 방법

설계된 개질기의 성능을 측정하기 위해 천연 가스와 물을 반응원료로 공급하면서 수증기 개질 반응을 진행하였다. 개질 반응용 천연가스는 취기제로 첨가된 황성분이 촉매독으로 작용한다. 상온 흡착식 탈황기를 이용하여 탈황된 천연가스를 개

질 반응기로 공급하였다. 반응 원료로 사용되는 물은 개질기 본체에서 배출되는 연소 배가스의 열을 이용하여 수증기로 변환된다. 이를 위하여 폐열 회수형 수증기 발생기를 설치하였다. 수증기와 혼합된 천연가스는 개질 반응부에서 배출되는 고온 생성 가스와 열교환 후 예열되어 개질기로 도입된다. 천연가스와 수증기는 개질 반응기 내부에 충전된 촉매층에서 수소를 포함한 개질 생성 가스로 전환된 후 열교환기로 공급되어 도입되는 원료와 1차 열교환하여 300~350 °C 정도로 냉각된 후 응축기에서 추가 냉각되어 40 °C 이하로 배출되고 기액 분리기에서 기상과 액상으로 분리된다. 1차 열교환 후의 개질 생성 가스 온도 설정은 차후 추가될 고온 수성 가스 전화 반응의 입구 온도 조건을 고려하여 설정하였다. 기액 분리기에서 배출되는 기상은 유량을 측정하고 생성 가스의 성분은 가스 크로마토그래피를 이용하여 분석하였다. 개질기 성능 측정을 위한 시스템 구성은 Fig. 5와 같다.

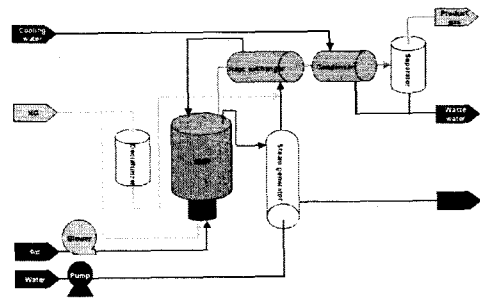


Fig. 5 개질기 성능 측정 시스템 구성

3.3 내부 열교환 구조에 따른 개질기 열효율 특성

개질기 성능 측정 시스템을 이용하여 prototype-1 개질기와 prototype-2 개질기의 운전 특성을 측정하였다. Fig. 6은 반응용 천연가스 6.6 Nm³/h, S/C 비 2.7의 동일 운전조건에서 prototype-1과 prototype-2의 개질 온도에 따른 메탄 전환율과 개질 열효율을 비교한 그림이다. 동일 개질 온도에서 prototype-2의 경우가 평형 전환율에 더욱 근접한 메탄 전환율을 얻을 수 있었다. 특히 개질 온도가 700 °C 이하에서는 이러한 경향이 더욱 뚜렷하다. 이는 prototype-2 개질기가 더욱 효과적인 열전달에 의해 촉매 반응이 진행됨을 보여주는 것이다.

Table 1에 개발된 리포머의 최적 운전 조건을 정리하여 나타내었다. 단순화 구조에 의해 prototype-2 리포머는 부피 기준으로 prototype-1 리

포머의 66% 정도로 컴팩트화 되었다. 수소 생산량 기준으로 23 Nm³/h 이상을 생산 가능하며 이때 개질 효율은 73 % 이상을 나타내었다.

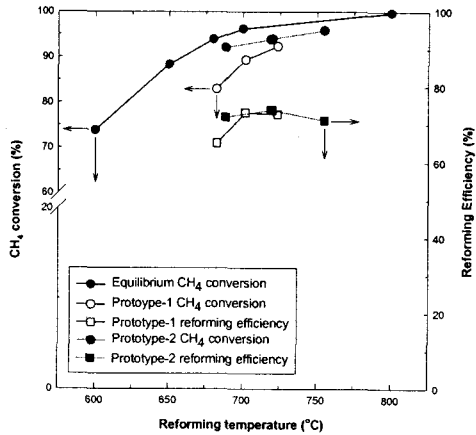


Fig. 6 개질 온도에 따른 Prototype-1, prototype-2 개질기의 메탄 전환율과 개질 열효율 비교. (반응용 NG 공급량 = 6.6 Nm³/h, S/C 비 = 2.7)

Table 1 천연가스 수증기 개질기의 성능

구분	Prototype-1	Prototype-2	
개질기 부피(L, 단열재 포함)	680 (φ780×L1425)	446 (φ672×L1257)	
수소생산량 (Nm ³ /h)	23.4	23.8	
S/C 비	2.7	2.7	
개질 온도 (°C)	700	720	
개질생성가스 농도 (Vol. %, 건조기체기준)	H ₂	75.8	75.9
	CO ₂	10.9	9.0
	CH ₄	2.6	1.7
	CO	10.7	13.4
CH ₄ 전환율 (%)	89.3	92.8	
개질 효율* (% LHV)	73.2	73.9	

$$\eta = \frac{\Delta H_{H_2-LHV} \cdot n_{H_2}}{\Delta H_{NG-LHV} \cdot (n_{NG-ref} + n_{NG-burn})}$$

4. 결론

연료전지 자동차의 수소 공급을 위한 인프라인 수소충전소를 구축하였다. 수소 압축, 저장, 충전(dispensing) 시스템은 20 Nm³/h 규모의 생산 수소를 400 bar로 압축 저장하고 350 bar로 연료전지 자동차에 충전 가능하도록 구성하였다. 고정식 수소 자동차 충전소의 시설기준 및 기술기준은

산업자원부 고시(제2005-43호, 2005. 4. 14)에 의하여 고압가스 안전 관리법 시행규칙 별표 6의2의 규정인 CNG 스테이션의 기술기준과 안전기준을 준용하도록 하고 있으므로 설비 사용을 위한 인허가 대응 작업을 수행하였고 완성검사를 통과하였다. 수소충전소의 수소를 공급하기 위한 중소형 천연가스 수증기 개질기의 국산화 설계 기술 확보를 위하여 열 및 시스템 통합 설계를 수행하였다. 고효율화 설계를 위해 향류식 입출구 구성을 이용하였고 제작의 단순화를 고려하여 동심관 중첩형 구조를 채택하였다. 설계된 prototype-1, prototype-2 개질기를 제작하고 성능 시험을 수행하였다. 개질 촉매층과 연소 배가스 배출 유로 사이에 개질 반응 원료 예열층을 형성한 prototype-2 개질기는 개질 생성 가스 배출 유로를 개질 반응 원료 예열층과 인접하도록 설계한 prototype-1 개질기보다 높은 개질 열효율을 나타내었다. 개발된 개질기는 23 Nm³/h 이상의 수소 생산이 가능하며 73 % 이상의 개질 효율을 나타내었다.

후기

이 연구는 과학기술부의 지원으로 수행하는 21세기 프론티어연구개발사업(수소에너지사업단)의 일환으로 수행되었습니다.

References

- [1] J.J. Winebrake and B. P. Creswick, 2003, "The Future of Hydrogen Fueling Systems for Transportation: An Application of Perspective-based Scenario Analysis Using the Hierarchy Process", Technological Forecasting & Social Change. 70, 359-384
- [2] C. Song, 2002, "Fuel Processing for Low-temperature and High-temperature Fuel Cells Challenges, and Opportunities for Sustainable Development in the 21st Century", Catalyst Today, 77, 17-49
- [3] J. Xu and G. F. Froment, 1989, "Methane Steam Reforming, Methanation and Water-Gas Shift: I. Intrinsic Kinetics". AIChE J. 35, 88-96
- [4] J. Xu and G. F. Froment, 1989, "Methane Steam Reforming, Methanation and Water-Gas Shift: II. Diffusional Limitations and Reactor Simulation", AIChE J. 35, 97-103