

용융탄산염 연료전지용 평판형 개질기 열유동 전산유체역학 해석

신 동훈[†], 서 혜경^{**}, 임 희천^{**}, 이 상득^{***}

*국민대학교 기계자동차공학부, **한전전력연구원 신재생에너지그룹,

***한국과학기술연구원 환경공정연구부

Computational Fluid Dynamics Analysis of Plate Type Reformer for MCFC

Donghoon Shin[†], Hyegyung Seo^{**}, Heechun Lim^{**}, Sangduk Lee^{***}

**School of Mechanical & Automotive Engineering, Kookmin University, 861-1, Jeongneung-dong, Seongbuk-gu, Seoul, 136-702, Korea*

***Renewable Energy Research Group, Korea Electronic Power Research Institute, 103-16, Moonji-dong, Yuseoung-gu, Daejeon 305-380, Korea*

****Reaction Media Research Center, Korea Institute of Science & Technology, Hawolgok 2-dong, Seongbuk-gu, Seoul, 136-791, Korea*

ABSTRACT

The plate reformer consisting of combustion chamber and reforming chamber for 25 kW MCFC stack has been operated and computational fluid dynamics was applied to estimate reactions and thermal fluid behavior in the reformer. The methane air 2-stage reaction was assumed in the combustion chamber, and three step steam reforming reactions were included in the calculation. Flow uniformity, reaction rate and species distribution, and temperature distribution were analyzed. In particular, temperature distribution was compared with the measurements to show good agreement in the combustion chamber, however, inappropriate agreement in the reformer chamber.

KEY WORDS : methane-steam reformer(메탄수증기 개질기), computational fluid dynamics(전산유체역학), hydrogen(수소), molten carbonate fuel cell(용융탄산염 연료전지)

1. 서 론

연료전지는 전기화학적 반응을 통하여 전기에너지를 직접 발생시키는 신에너지 시스템으로서, 다양한 분야에 적용을 위해 각 선진국들을 중심으로 연구 및 상용화가 진행되고 있다. 상당수의

전망들은 향후 10년 후면, 전 세계는 화석연료의 고갈로 인하여 고효율의 수소에너지 시스템으로 전환되고, 연료전지가 중요한 에너지 변환장치로 각광받을 것이 예상되고 있다.

연료 개질기는 화석연료를 촉매반응 등의 화학적 방법을 활용하여 수소를 생산하는 시스템 기술로서, 연료전지 운전에 필수적인 기술이다. 현재, MCFC(Molten carbonate fuel cell)과 SOFC

[†]Corresponding author : d.shin@kookmin.ac.kr

(Solid-oxide fuel cell) 기술은 연료개질반응을 포함하는 것이 일반적이며, 연료개질 기술은 다양한 기술들이 개발 및 상용화되고 있다. 특히, 연료개질반응의 고효율화, 소형화, 경량화, 운전용이성, 경제성 등을 확보하기 위한 많은 연구가 진행되고 있다^{1,2)}.

본 연구에서는 MCFC용으로 개발된 연료 개질기를 연구대상으로 하는데, MCFC용으로 개발되고 있는 대표적인 개질기로는 Hitachi사의 2단 연소형, Chiyoda사의 열교환기형, IHI사의 평판형 등이 있다^{3,4)}. 이들 개질기는 대부분 저 발열량의 anode 가스를 연소시키기 위해 촉매반응을 이용하고 있는데, 평판형 개질기는 단위 부피당 전열면적이 크고, 연소온도가 낮아 상업용 촉매의 활용에 적합하고, 장치의 제작도 저가의 재질로 제작이 가능하며, 또한, 구조적으로 적층하여 공간효율을 극대화할 수 있으며, 연료전지 스택과 합체한 스택-개질기 일체형 모듈을 제작할 수 있는 장점이 있다.

본 연구에서는 25 kW급 MCFC 시스템의 연료개질 시스템으로 평판형 개질기를 대상으로, 전산유체해석을 위한 반응모델을 개발하고, 유동형태를 해석하여 연료개질시스템의 성능을 평가하였다. 또한, 온도측정 실험자료와 비교를 통하여 전

산해석 모델의 정확도를 평가하는데 목적을 두었다.

2. 장치 및 전산해석 모델

2.1 장치의 개요

Fig. 1은 MCFC 연료전지용 25 kw급 메탄-수증기 개질기의 설계도와 개념도를 보여준다. 전체 영역은 수평 실린더형태를 갖으며, CH₄와 수증기의 혼합물은 상부의 분배관 및 노즐을 통해 투입되고, 분산영역을 통과한 뒤, 정사각형 영역으로 구성된 개질촉매 영역을 통과하면서 개질반응을 발생시킨 후, 하부로 배출된다. 한편, 가열 연료인 메탄과 산화제인 산소 및 질소의 혼합물은 하부에서 각각의 영역으로 투입되고 중간의 다공성 매질을 메탄이 통과하여 산화영역으로 투입되고 연소됨으로서 연소 에너지를 발생시켜 개질반응에 에너지를 공급한다. 개질영역 및 연소영역내부에 위치별로 각각 5개의 열전대를 설치하여 온도

Table 1 Reformer dimensions and contents

항 목	사 양	
개질실 단위 chamber	5 chambers로 구성	
Dimension	750ΦID×16 mmL	
개질촉매	종류/형태	Ni계/3.2Φ×3.2 mmL/cylinder
	충진량	3.67 ℓ (또는 4530 g)
개질원료입구 hole dia./개수	7.0 mm/1개	
Reformer 출구 hole dia./개수	8.0 mm/3개	
개질 원료	CH ₄ +H ₂ O	
연소실 단위 chamber	6 chambers로 구성	
Dimension	750ΦID×22 mmL	
연소방식	연료분산 촉매연소방식	
연소촉매	종류/형태	Pd 계/2.5~3.5 mmΦ sphere
	충진량	3.00 ℓ (또는 1178 g)
연료분산관	0.8Φ sieve hole 112개	
연료 입구 hole dia./개수	3.5 mm/5개	
산화제 입구 hole dia./개수	8.0 mm/3개	
연소가스 출구 hole dia./개수	8.0 mm/5개	
연료/산화제	CH ₄ +N ₂ /Air	
원료와 연료 flow pattern	counter current	

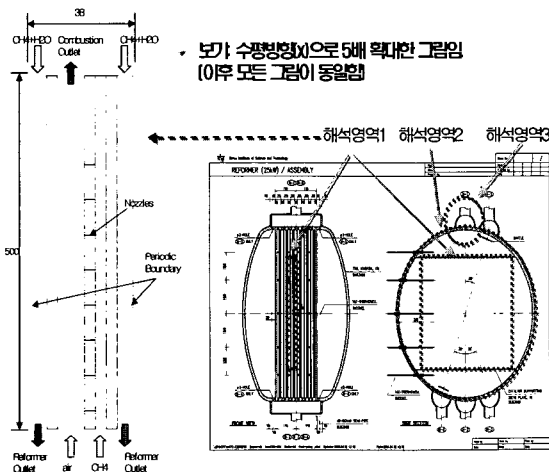


Fig. 1 Reformer shape and calculation study areas

Table 2 Reactions and reaction coefficients

반응식	활성화에너지 (J/kgmol)	선지수계수 (1/sec)	발생장소
$CH_4+1.5O_2 \rightarrow CO+2H_2O$	2e+07	5.012e+11	연소영역
$CO+0.5O_2 \rightarrow CO_2$	1.7e+08	2.239e+12	연소영역
$CH_4+H_2O \rightarrow CO+3H_2$	2.4e+08*	9.49e+15*	개질영역
$CO+H_2O \rightarrow CO_2+H_2$	6.713e+07*	4.39e+05*	개질영역

분포를 측정하였다. Table 1은 각 영역들의 크기와 충전촉매의 종류 등을 나타내었다.

2.2 전산해석모델

전산해석은 FLUENT 6.1을 이용하였으며, Fig. 1에 나타난 바와 같이 3가지 영역으로 구분하여 해석을 수행하였는데, 해석영역 1은 2차원 모델로서, 개질실 개질반응과 연소영역의 연소반응의 상호작용을 해석하여 성능을 평가하고, 온도 측정결과와 비교하였으며, 계산격자가 Fig. 2에 나타난 해석영역 2는 2차원 모델로 개질가스가 이동하는 원형 단면 영역에서의 개질가스의 이동경로를 파악하여, 설계의 적절성을 파악하였으며, 계산격자가 Fig. 3에 나타난 해석영역 3은 3차원 모델로 총 5개의 개질실로 개질가스의 균일한 배분이 가능한지 여부를 파악하였다.

전산유체해석에서 난류는 Standard k-ε Model, 복사는 P1 method, 화학반응은 Volumetric Arrhenius Finite Rate/Eddy Dissipation Model을 적용하였다. Table 2의 연료개질 화학반응계수들은 촉매질량을 기준으로 한 Xu와 Froment가 제시한 개질반응식을 기준으로 공간반응계수를 유도한 결과이다⁵⁾.

2.3 운전조건

Table 3는 실험과 전산유체해석을 위한 운전조건을 나타내었으며 운전압력은 1 기압 조건에서 운전하였다.

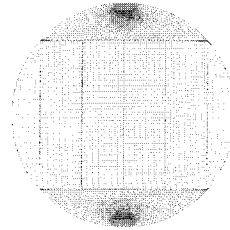


Fig. 2 2-D calculation mesh for cross-sectional flow analysis of 25 kW plate reformer

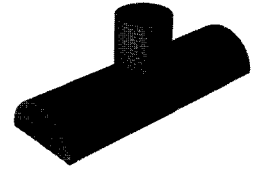


Fig. 3 3-D calculation mesh for gas distributor flow analysis

Table 3 Operation conditions for 25 kW plate type reformer

위치	항목	화학종	유량 (Nm ³ /hr)	온도(K)
연소실	연료공급	CH ₄	3.36	600
		N ₂	24.24	600
	공기공급	Air	80	600
개질실	개질가스	CH ₄	6.52	1000
		H ₂ O	19.6	1000

3. 결과 및 토의

3.1 실험결과

Fig. 4는 운전결과중 온도 측정결과를 TMS화면에서 본 결과이다. 개질실의 온도는 690-740℃ 부근에서 점진적으로 하강하여 출구에서는 500℃ 내외로 배출되는 것으로 나타났으며, 연소실 가스는 입구인 하부에서 300-430℃로 유입되고 상부로 올라가면서 점진적으로 온도가 상승하여 출구에서는 745-770℃ 내외로 배출되는 것으로 나타났다.

3.2 전산해석결과

Fig. 5는 해석영역1에서의 속도벡터를 보여준다. 연료영역으로 주입된 연료(메탄)가 얇은 노즐을 통해 연소촉매구간으로 투입되고, 여기서 공기와 만나서 반응하여, 온도가 상승함에 따라 상부로 갈수록 연소실 가스 속도가 점차 증가하여 상승하는 것을 알 수 있다. 한편, 개질영역에서는 전

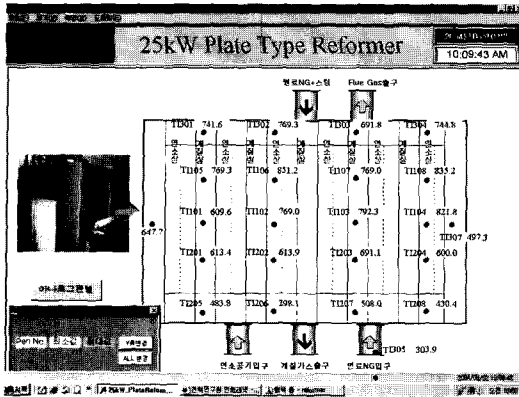


Fig. 4 Temperature measurement result of 25 kW plate type reformer

반적으로 온도분포가 연소실에 비해 균일한 관계로, 유속 역시 거의 일정한 속도로 하향하고 있는 특성을 보인다.

Fig. 6은 온도분포를 보여준다. 연료인 메탄이 연료영역에서부터 연소촉매영역으로 유입하면서 연소반응을 일으켜, 국부적인 고온 영역을 형성함을 알 수 있다. 또한, 상부로 갈수록, 연료의 연소 현상이 증첩됨으로 인하여 온도가 상승하는 것을 알 수 있다. 한편, 개질영역에서는 상부에서 유입된 메탄, 수증기 혼합물이 반응하면서 온도가 다소 저하되지만, 계속되는 연소실로부터의 열전달의 영향으로 연소실에 비해 균일한 온도를 유지하는 것을 확인할 수 있다.

Fig. 7은 메탄의 몰분율을 보여준다. 연료공급 영역에서는 반응이 발생하지 않으므로 메탄농도가 일정하지만, 연소영역으로 유입되며 빠른 속도로 반응하여 메탄이 소멸되는 것을 알 수 있다. 개질영역에서는 수증기와 혼합되어 상부로 유입된 이후에 급격한 속도로 개질반응이 발생하여 하부에 위치한 출구에서는 낮은 농도로 배출되는 것을 알 수 있다.

Fig. 8의 H₂ 몰분율은 개질기 운전의 목적으로서 H₂의 농도가 높을수록 개질기의 성능이 우수한 것으로 판단할 수 있다. 연소영역 내에서도 메탄의 연소반응 중에 수소가 생성되지만, 개질영역 내에서의 수소발생이 더욱 지배함을 알 수 있다.

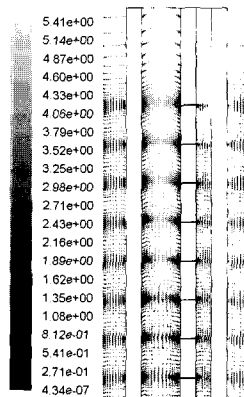


Fig. 5 Velocity Vectors

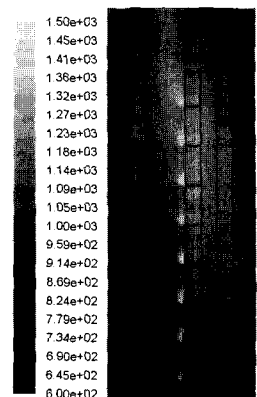


Fig. 6 Temperature (K)

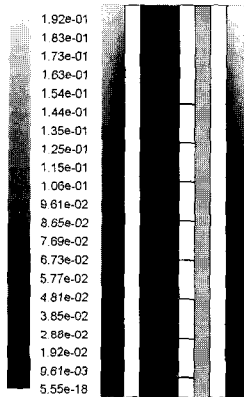


Fig. 7 CH₄ mole fraction

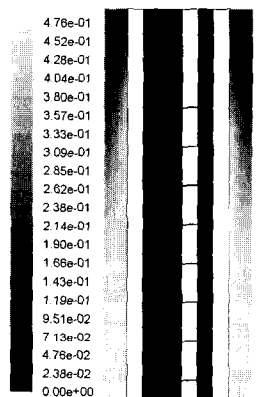


Fig. 8 H₂ mole fraction

개질영역에서의 메탄과 수증기의 개질반응에 의해 하부로 내려갈수록 수소농도가 증가하는 것을 알 수 있다.

Fig. 9는 연소영역에서의 온도분포의 측정값과 전산해석 결과를 비교한 결과이다. 측정은 두개의 연소영역에서 수행하였으며, 측정위치는 Fig. 1에 나타나 있다. 삼각형과 사각형으로 구분된 두개의 측정결과는 거의 유사한 값을 보여주며, 전산해석 결과와도 거의 유사한 결과를 보여주어, 전산해석 결과의 신뢰성을 보여준다. CFD 해석결과는 두개를 출력하였는데, 청색으로 표시된 것이 연소영역 중심에서의 온도를 나타내며, 연녹색으로 표시된 것은 개질영역과 연소영역 사이 간벽의 온도를 보여준다. 연소영역 중심에서의 온도는 측정값

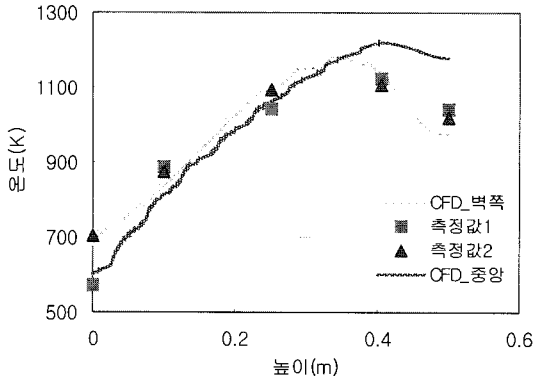


Fig. 9 Measured and calculated temperatures in the combustion chamber

과 비교하면 상부에서 최대 100°C 정도의 차이를 보이는 반면, 간벽에서의 온도는 측정값과 거의 일치하는 것을 알 수 있다. 온도 측정 시 협소한 연소영역에서 간벽의 영향을 받을 수도 있을 것이므로, 어떤 값을 취해서 비교하는 것이 타당하지는 좀 더 논의가 필요하다.

Fig. 10은 개질영역 온도분포 측정값과 전산해석결과를 비교한 그래프이다. 같은 높이에서의 측정결과1과 2가 다소 큰 차이를 보이고 있어서 측정결과와 신뢰성에 문제가 있으나, 전산해석결과와의 비교에서 높이 0 m와 0.4 m 위치를 제외하세 곳에서는 측정결과 범위에 전산해석 결과가

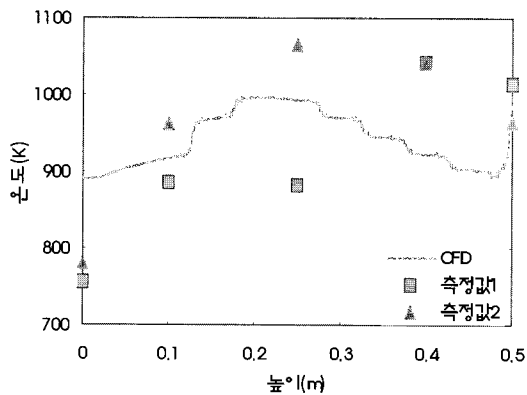


Fig. 10 Measured and calculated temperatures in the reforming chamber

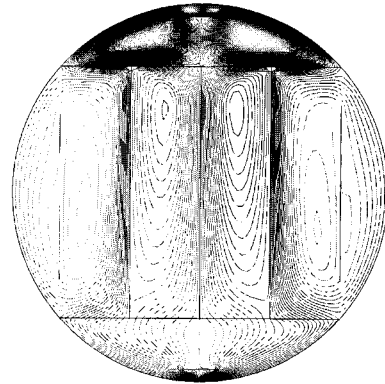


Fig. 11 Streamlines in the cross-section of the reforming chamber

포함되는 것을 확인할 수 있다. 개질영역은 연소영역과 마찬가지로 협소하며, 실험 시 열팽창에 의해 변형이 심하게 일어난 정황으로 미루어 향후 좀 더 정밀한 측정결과를 획득하고 이를 이용한 평가가 필요하다.

Fig. 11은 유선도를 출력한 결과이다. 반응영역 내에 순환하는 유선을 확인할 수 있으며, 네 개의 반응영역중 양측면의 영역의 유선이 중앙에 가까운 두개의 영역에 비해 많음은, 양측면으로 흐르는 유량이 더 많음을 보여준다.

Fig. 12는 유체의 하강분포를 확인할 수 있는 y 방향 속도분포를 보여준다. 중앙의 두 영역 하단

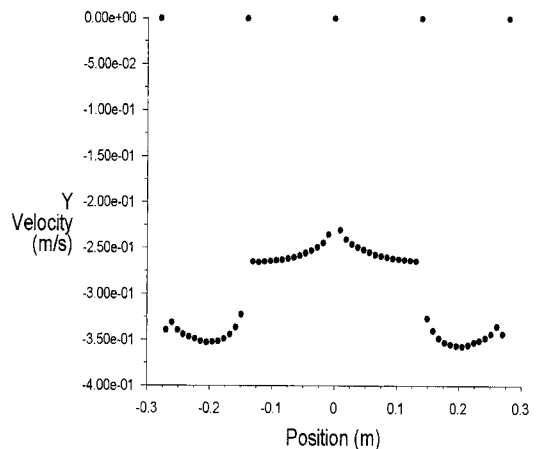


Fig. 12 Y-velocity distribution at the bottom of the reforming chamber

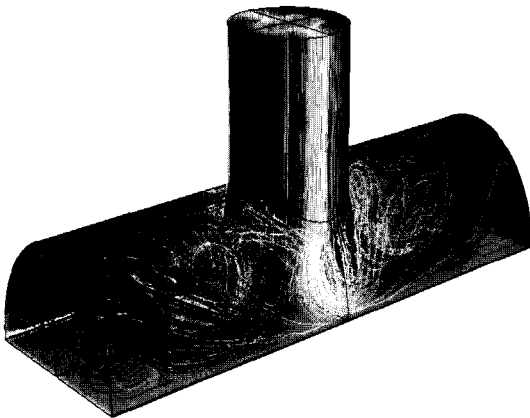


Fig. 13 Streamlines in the distributor

에서의 속도는 -0.25 m/s 정도이며, 양측 영역은 -0.35 m/s 에 이르러 양측 영역으로의 유동흐름이 더 많음을 알 수 있다.

Fig. 13과 Fig. 14는 분산관내에서의 유선도와 속도분포를 보여준다. 출구의 면적이 작은 관계로 유선은 분산관내에서 어지럽게 이동하다가, 출구에서는 출구 위치에 상관없이 144 m/s 정도의 동일한 유속으로 빠져나감을 알 수 있다.

4. 결 론

25 kW급 평판형 개질기 개질실 및 연소실 유동장, 온도분포 및 반응가스 분포 해석결과, 전산 해석결과와 측정결과가 유사하게 나타나는 것을 확인하였으며, 해석결과의 신뢰도를 검증할 수 있었다. 연소영역 내 온도는 실험과 해석결과가 거의 일치하는 의미있는 결과를 보여주었으며, 개질 영역내의 온도분포는 다소 오차가 발생하였는데, 이는 해석 모델의 보완과, 측정방법의 정밀화를 통해 향후 보완할 수 있을 것으로 판단된다.

25 kW급 평판형 개질기 분산관 및 개질영역 단면에서의 유동형태를 해석한 결과, 분산관에서 5개의 분산노즐로의 유입은 동일 유량임을 확인하였으나, 개질영역에서의 유동형태는 네 개의 영역중 양측면에 있는 두개의 영역에서의 유량이 중앙에 위치한 두개영역에서의 유량에 비해 대략

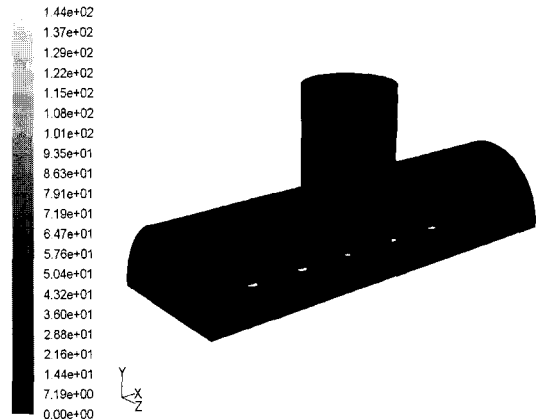


Fig. 14 Velocity magnitude contour

1.5 배 정도 높은 것으로 나타났다. 또한, 각 개질 영역에서 유동은 크게 순환하는 순환유동형태를 보였다.

후 기

본 연구는 2006년도 국민대학교 교내학술연구 지원비로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

- 1) Y. H. Yu, M. H. Sosna, "Modeling for Industrial Heat Exchanger Type Steam Reforming", Korean J. Chem. Eng. Vol. 18, No. 1, 2001, pp. 127-132.
- 2) 이상득, 황인철, 이병권, 서인석, 임태훈, 홍성안, "용융탄산염 연료전지용 평판형 개질기의 온도와 공간속도에 따른 성능변화", 화학공학 Vol. 38, No. 5, 2000, pp. 719-724.
- 3) T.H. Lim, H.C. Lim, S. Hong, Chemical Industry and Technolgy, Vol. 16, 1998, p. 407.
- 4) T. Hirataz, M. Mizusawa, M. Koga, S. Hatori, IHI Engineering Review, Vol. 29, 1996, p. 53.
- 5) J. Xu, G.F.Froment, Methane steam reforming, methanation and water gas shift. I. Intrinsic kinetics, AIChE J. Vol. 35, 1989, pp. 97-103.