

중저온 열원에 의한 메탄 수증기 개질의 형상 인자에 따른 특성

신가희* · 윤진원* · 유상석**†

* 충남대학교 대학원, ** 충남대학교 기계공학과

Geometric Characteristics of Methane Steam Reforming with Low Temperature Heat Source

Gahui Shin*, Jinwon Yun* and Sangseok Yu**†

* Graduate school, Chungnam Nat'l Univ.

** Dept. of Mechanical Engineering, Chungnam Nat'l Univ.

(Received July 11, 2016 ; Revised September 23, 2016 ; Accepted October 16, 2016)

Key Words: Heat Transfer(열전달), Numerical Simulation(수치 해석), Steam Reformer(수증기 개질기), Hydrogen(수소), Low Temperature Heat Source(저온열원)

초록: 폐열을 열원으로 사용하는 저온형 개질기는 하이브리드 연료전지 시스템의 효율향상을 위해 사용되고 있다. 저온형 개질기의 경우 저온의 열적상태에서 높은 열전달 효율을 내는 것이 중요하며, 이를 위한 형상 최적화의 과정이 필요하다. 본 연구에서는 제한된 열공급 상황에서 개질기의 형상인자 변화에 따른 온도 및 반응특성을 전산해석을 통하여 알아보하고자 하였다. 해석결과 저온형 개질기의 반응이 활발히 일어나는 영역은 온도가 높은 후단에 제한되는 현상을 보여 고온형 개질기와의 차이를 나타내었다. 또한 개질기의 기체공간속도(Gas hourly space velocity, GHSV)를 감소시키거나 열전달 면적을 증대시킴으로써 효율을 향상시킬 수 있음을 확인하였고 중횡비에 따른 해석을 실시한 결과 저온형 개질기의 경우 길이방향보다는 반경방향의 열전달을 증대시키는 방법이 효과적임을 확인하였다.

Abstract: In a hybrid fuel cell system, low-temperature reforming technology, which uses waste heat as a heat source, is applied to improve system efficiency. A low temperature reformer is required to optimize geometry in low thermal conditions so that the reformer can achieve the proper methane conversion rate. This study analyzed internal temperature distributions and the reaction patterns of a reformer by considering the change of the shape factor on the limited heat supply condition. Unlike the case of a high temperature reformer, analysis showed that the reaction of a low temperature reformer takes place primarily in the high temperature region of the reactor exit. In addition, it was confirmed that the efficiency can be improved by reducing the GHSV (gas hourly space velocity) or increasing the heat transfer area in the radial direction. Through reacting characteristic analysis, according to change of the aspect ratio, it was confirmed that a low temperature reformer can improve the efficiency by increasing the heat transfer in the radial direction, rather than in the longitudinal direction.

- 기호설명 -

r_i : 반응*i*의 화학반응 속도
 k_i : 반응*i*의 반응률
 K_j : 화학종*j*의 흡착평형 계수
 K_i : 반응*i*의 평형상수
 p_j : 화학종*j*의 분압

$A(k_i)$: 반응률 k_i 의 빈도인자
 $A(K_j)$: 흡착평형계수 K_j 의 빈도인자
 X_{CH_4} : 메탄전환율
 ω_j : 화학종*j*의 질량분율
 A_R : 개질부 단면 면적
 P : 접수길이
 D_H : 수력직경
 L : 반응부 길이
 \emptyset : 수력직경 기준 중횡비

† Corresponding Author, sangseok@cnu.ac.kr

© 2016 The Korean Society of Mechanical Engineers

1. 서 론

고온 발전용 연료전지는 열관리 및 온도제어를 효과적으로 하기 위해 일반적으로 내부 개질을 채용한다. 이러한 내부 개질형 고온 발전용 연료전지의 효율 향상을 위해 최근에는 다양한 형태의 하이브리드 기술들이 개발되고 있다.⁽¹⁾ 하이브리드 시스템의 효율을 향상시키기 위해서는 특히 내부의 열을 효과적으로 활용하는 것이 매우 중요하다. 고온 발전용 연료전지의 연료극에서는 연료의 일부가 미반응 상태로 배출되게 된다. 기존의 연료전지 기술에서는 미반응 가스의 촉매연소를 통해 열에너지를 회수하는데만 초점이 맞추어져 있었지만, 최근에는 또 다른 방법으로 후단의 미반응가스를 이용한 추가 발전을 통해 전체 시스템의 효율을 향상시키고자 하는 연구들이 진행되고 있다.⁽²⁾

외부 수증기 개질기는 내부 개질의 부담을 줄이면서 시스템의 폐열을 활용하여 시스템 효율을 높이는 기술로, 주로 촉매 연소를 결합한 통합형 개질 기술에 대한 연구가 진행되고 있다.⁽³⁻⁵⁾ 촉매연소와 개질을 결합한 기술이 고온형 개질을 위한 기술이라고 한다면, 저온형 개질 기술은 순수 폐열을 활용한 개질 기술으로써 열원의 열량이 촉매연소로 얻을 수 있는 열량 보다 낮은 경우에 사용되는 기술이다.

1989년 Xu 등은 수증기 개질기 내부에서의 반응모델을 제시하였으며 실험적 연구를 통해 각 반응단계에 관한 반응속도 식을 화학종의 분압의 형태로 제안하였다.^(6,7) 이러한 연구를 바탕으로 다공성 개질 촉매 내부의 화학종 농도 및 온도 분포를 평가하고 이들의 상관관계에 대해 규명하는 연구가 진행되었다.⁽⁸⁾ 이러한 개질기에 관한 연구는 일반 연소기를 사용하는 경우가 대부분이며, 하이브리드 시스템에 적용하기 위한 연구에서도 연료전지의 미연탄화수소를 이용하는 촉매연소기를 통해 개질기로 고온의 열을 공급해주는 경우의 연구만이 이루어져왔다.⁽⁹⁻¹¹⁾

본 연구에서는 저온 폐열을 활용하는 개질기에서 최대 개질률을 얻을 수 있는 방법에 관해 알아보고자 전산 해석을 이용한 연구를 수행하였다. 해석은 COMSOL Multiphysics를 사용하여 진행되었으며 3차원 정상상태 해석을 수행하였다. 개질기 내부에서의 반응을 모사하기 위하여 Xu와 Froment가 제시한 수증기 개질 모델을 사용하였으며, 실험 데이터와의 검증과정을 거쳐 해석의 신뢰성을 확인하였다. 개질기에 공급되는 열원은 고

Table 1 Parameters of steam reforming analysis

Parameter	Values	Unit
Reforming zone diameter	148	mm
Heat source tube diameter	19.05	mm
Number of heat source tube	7	ea
Inlet temperature of reforming gas	473	K
Inlet temperature of heat source gas	1000	K

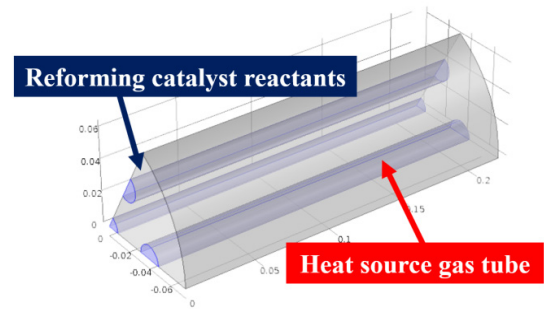


Fig. 1 Geometry of steam reformer for computational analysis

온형 개질기의 경우 공급해주는 열량에 비하여 상대적으로 저열량을 갖는 가스를 공급하였으며, 열원의 작동유체는 공기로 가정하였다.

고온형 개질기와 달리 저온 폐열을 활용해야 하므로 열전달 측면에서 취약하기 때문에, 다양한 형상인자들을 변화에 따른 개질기 내부의 온도변화 및 개질반응의 양상을 살펴보았으며, 최종적으로 저온형 개질기의 개질률 향상을 위한 형상적 최적설계를 제안하고자 하였다.

2. 전산해석

2.1 해석모델

해석을 위한 개질기의 형상은 Fig. 1과 같이 쉘 엔튜브 형상을 선정하였으며, 입구측 유속을 균일하게 설정하여 해석을 진행하였다. 해석대상은 촉매가 충전되어 있어 반응이 일어나는 개질 영역과 반응에 필요한 열을 공급하는 내부의 열원관으로 나뉘어지며, 각 유동은 대향류로 흐르도록 하였다. 개질영역의 입구에서는 메탄과 수증기가 SCR 3의 조건으로 유입되며, 열원관에는 공기로 가정된 유동이 유입되었다. 해석을 위한 각 변수들의 감쇄인자(Damping factor)는 열원유속 및 압력 변수에 0.8, 온도 및 화학종 농도 변수에 0.4를 적용하였다.

2.2 화학반응 시스템

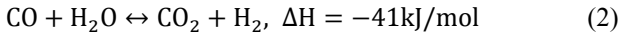
메탄과 수증기가 유입되는 반응기 내부에서 발

생하는 메탄-수증기 개질 반응은 아래의 세가지 반응으로 대표된다.

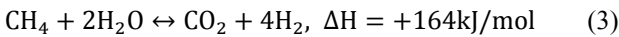
Methane steam reforming(SR)



Water gas shift(WSG)



Reverse methanation(DSR)



메탄 개질반응의 메커니즘을 모사하기 위해 많은 실험적, 해석적 연구가 수행되었다.^(12,13) 본 연구에서는 Xu와 Froment의 모델을 사용하여 각 반응단계의 화학반응속도를 예측하였다.

$$r_1 = \frac{k_1 \left(p_{\text{CH}_4} p_{\text{H}_2\text{O}} - \frac{p_{\text{H}_2}^3 p_{\text{CO}}}{K_1} \right)}{p_{\text{H}_2}^{2.5} \text{Den}^2}, \text{ kmol/kg}_{\text{cat}}/\text{h} \quad (4)$$

$$r_2 = \frac{k_2 \left(p_{\text{CO}} p_{\text{H}_2\text{O}} - \frac{p_{\text{H}_2} p_{\text{CO}_2}}{K_2} \right)}{p_{\text{H}_2} \text{Den}^2}, \text{ kmol/kg}_{\text{cat}}/\text{h} \quad (5)$$

$$r_3 = \frac{k_3 \left(p_{\text{CH}_4} p_{\text{H}_2\text{O}}^2 - \frac{p_{\text{H}_2}^4 p_{\text{CO}_2}}{K_3} \right)}{p_{\text{H}_2}^{3.5} \text{Den}^2}, \text{ kmol/kg}_{\text{cat}}/\text{h} \quad (6)$$

여기서 Den은 다음과 같이 정의된다.

$$\text{Den} = 1 + K_{\text{CO}} p_{\text{CO}} + K_{\text{H}_2} p_{\text{H}_2} + K_{\text{CH}_4} p_{\text{CH}_4} + \frac{K_{\text{H}_2\text{O}} p_{\text{H}_2\text{O}}}{p_{\text{H}_2}} \quad (7)$$

이상의 반응속도 식을 보게 되면 반응은 수소의 분압에 크게 작용되는 것을 알 수 있다. 반응기에 메탄과 수증기가 유입될 때 수소의 분압은 0에 수렴한 상태로 유입되게 되고 이러한 경우 반응속도의 수학적식은 무한으로 발산하게 되는 것은 자명하다. 이러한 수학적 모델의 오류를 방지하기 위하여 초기 수소의 분압의 조정하였다.

반응률 k_i 와 흡착평형계수 K_j 는 Van't Hoff 방정식을 사용하여 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$k_i = k_{i,T_r} \exp \left[-\frac{E_i}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_r} \right) \right] \quad (8)$$

$$K_j = K_{j,T_r} \exp \left[-\frac{\Delta H_j}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_r} \right) \right] \quad (9)$$

식 (8)~(9)은 Arrhenius의 식을 형태로 다시 쓰여

질 수이다.

$$k_{i,T_r} = A(k_{i,T_r}) \exp \left(-\frac{E_i}{RT_r} \right) \quad (10)$$

$$K_j = A(K_j) \exp \left(-\frac{\Delta H_j}{RT_r} \right) \quad (11)$$

빈도인자 A 는 기준온도에 대한 실험적 데이터를 사용하여 계산된다. 본 연구에서는 빈도인자를 계산하기 위해 Xu와 Froment의 반응모델에 적용된 상수들을 이용하여 다음과 같이 표현하였다.

$$A(k_i) = k_{i,T_r} \exp \left(\frac{E_i}{RT_r} \right) \quad (12)$$

$$A(K_j) = K_{j,T_r} \exp \left(\frac{\Delta H_j}{RT_r} \right) \quad (13)$$

2.3 지배방정식

해석에 사용된 지배방정식은 반응이 일어나는 개질부와 열원이 흐르는 내부 원형관에 각각 적용하였다. 개질부에는 촉매가 장입되어있기 때문에 다공성 매질 내의 유동을 모사하기 위하여 Darcy의 법칙을 사용하였다.

$$\nabla \cdot \left(\rho \left(-\frac{\kappa}{\mu} \nabla p \right) \right) = 0 \quad (14)$$

질량보존 방정식과 에너지 보존방정식은 화학반응에 따른 반응열을 고려하여 다음과 같이 적용하였다.

$$r_i = \nabla \cdot (\rho D_i^m \nabla w_i) + \rho (\mathbf{u} \cdot \nabla) w_i \quad (15)$$

$$\rho C_p \mathbf{u} \cdot \nabla T = \nabla \cdot (k \nabla T) + \sum r_i \Delta H_i \quad (16)$$

반면 열원관의 유동은 비압축성 층류로 가정하여 Navier-Stokes방정식을 적용하였다.

$$\rho (\mathbf{u} \nabla) \mathbf{u} = \nabla [-pI + \mu (\nabla \mathbf{u})] \quad (17)$$

$$\nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad (18)$$

열원관에 적용된 에너지 방정식은 다음과 같이 반응에 의한 열을 제외된 식을 사용하였다.

$$\rho C_p \mathbf{u} \cdot \nabla T = \nabla \cdot (k \nabla T) \quad (19)$$

2.4 실험적 검증

개질기의 해석적 연구를 수행하기에 앞서 실험과 검증을 선행하였다. 실험을 위해 Fig. 2의 개질

Table 2 Parameter of the experimental reformer

Parameter	values	Unit
Material of reformer	Inconel	-
SCR	3	-
Flow rate of the methane	16.9	LPM
Flow rate of the heat source	217.9	LPM
Experimental time	17	h



Fig. 2 Shell-tube type reformer for experiment

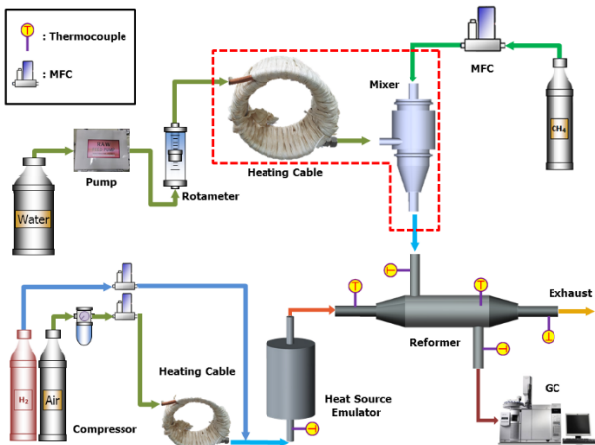


Fig. 3 Schematic diagram of experimental apparatus

기를 제작하였다. 개질기에 연결된 유출입관과 촉매층 내부에는 열전대를 설치하여 Compact Field Point(CFP)를 통해 데이터를 획득하였으며, 반응부 유동 후단에서 검출된 가스는 Agilent 6890를 이용하여 반응 후 화학조성을 분석하였다.

연료전지와 엔진을 결합한 하이브리드 시스템의 경우 엔진의 배기가스를 개질기의 열원으로 사용하게 된다. 이때의 엔진 배기가스 온도인 1000K을 열원의 입구 온도를 선정하였다.

열원의 온도를 높이기 위하여 수소와 공기가 혼합된 가스가 연소촉매가 충전되어 있는 열원모사장치를 거치도록 구성하였으며 열원의 온도를 조정하기 위하여 열원 모사장치에 유입하는 수소의

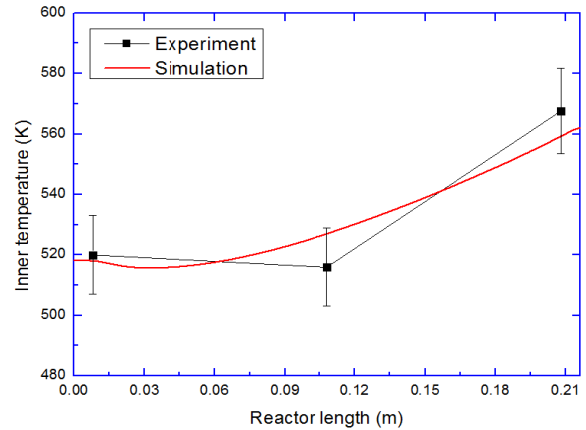


Fig. 4 Inner temperature along the longitudinal direction of reactor

양을 조절하여 최종적으로 개질기에 유입되는 열원의 온도가 1000K이 되도록 설정하였다.

Fig. 3에 나타낸 바와 같은 실험장치를 구성하였다. 개질기 입구에 유입되는 수증기를 발생시키기 위하여 Steam Generator의 공정을 거치도록 하였으며 발생된 수증기는 MFC를 통해 유입된 메탄과 함께 혼합되어 473K의 온도로 개질기에 유입되도록 장치하였다.

Fig. 4는 실험과 해석결과 열전대 위치의 개질기 내부온도를 비교하여 나타낸 것이다. 이를 보면 온도차이가 5% 이내의 편차를 보이는 것을 확인할 수 있다. 출구측 메탄개질률을 비교해본 결과 또한 실험과 해석에서 각각 11.93%, 11.27%로 나타나 5.5%의 차이를 보였다.

3. 전산해석 결과

3.1 공간속도의 영향

중온형 개질기의 해석결과 길이에 따른 화학조성을 나타낸 Fig. 5를 보면 개질 반응이 유동의 후단에서 활발히 진행되었다는 것을 확인할 수 있다. 이러한 양상은 유동의 전단 및 중단에서 대부분의 반응을 마감하는 고온형 개질기와 차이를 나타내었다. 이렇듯 중온형 개질기의 대부분의 반응이 후단에서 일어난다면 전체 구간에 개질 가스가 체류하는 시간은 반응에 어떠한 영향을 주는지를 확인하기 위하여 GHSV 변화에 따른 개질 특성 해석을 실시하였다.

GHSV는 STP조건인 개질가스 유량 및 형상인자들에 의하여 다음과 같이 정해진다.

$$GHSV[1/h] = \frac{Q_{Reforming\ gas}}{A_{Reforming\ area} \times L} \quad (20)$$

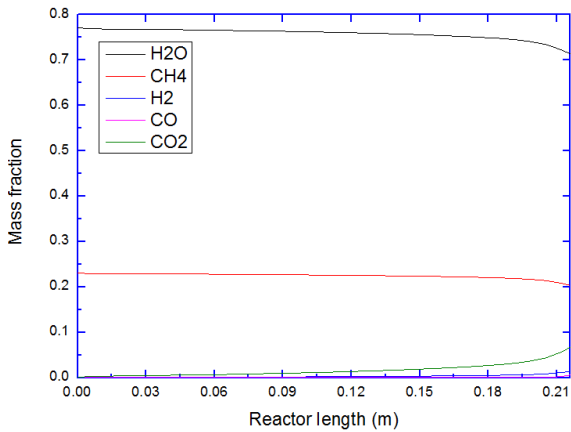


Fig. 5 Chemical composition along the longitudinal direction of the reactor

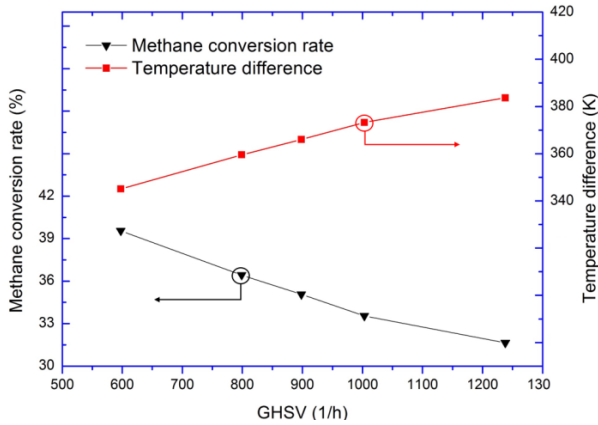


Fig. 6 Methane conversion rate and reforming gas outlet cross section temperature difference between the highest and lowest dependence on GHSV

이상의 변수들 중 길이 L만을 조정하여 600~1240[1/h]의 범위 내에서 GHSV를 변화시켜가며 해석을 진행하였다.

해석결과 GHSV에 따른 메탄전환률 및 개질 가스 출구단면의 최고-최저 온도차이를 나타낸 그래프를 통해 출구단에서의 온도편차는 GHSV가 감소할 수록 줄어들었으며, GHSV를 짧게 하면 할 수록 개질가스의 체류시간이 증가하여 메탄전환율이 증가하는 것을 확인하였다. 또한 이는 체류시간이 증가할수록 반응기 길이 내에서 열전달이 촉진되기 때문에 반응이 주로 일어나는 후단에 도달하는 개질가스의 온도가 높아지기 때문이다. 하지만 GHSV를 감소시키기 위해서는 촉매의 투입량을 증가시켜야 하기 때문에 개질기의 제작가격을 상승시키게 된다. 따라서 동일 GHSV 조건에서도 높은 개질효율을 증대시키기 위해서는 형상의 최적화가 필요하다.

Table 3 Parameter of computational analysis dependence on heat transfer area

Parameter	Unit	Case A	Case B	Case C
Reforming volume	L	3.28	3.28	3.28
Heat transfer area	m ²	0.0069	0.0904	0.1378



Fig. 7 Computational domain of analysis changed the heat transfer area

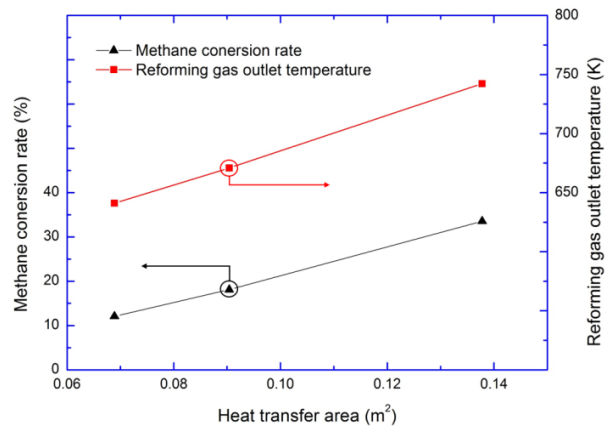


Fig. 8 Methane conversion rate and reforming gas outlet temperature dependence on the heat transfer area

3.2 열전달면적의 영향

열원관의 직경 및 개수의 변화에 따른 반경방향의 열전달 면적이 개질반응에 미치는 영향을 알아보고자 다음의 해석을 진행하였다.

해석을 위해 반응기 부피는 같지만 열원관의 직경을 상용관 사이즈에 따라 1, 3/4, 1/2 in로 변화시켜 열전달 면적을 각각 0.0689, 0.0904, 0.1378m²로 갖는 3가지 해석형상으로 선정하였으며, 이외의 열전달 계수를 포함한 열전달에 영향을 주는 모든 물성치는 고정하여 해석을 진행하였다.

해석결과를 보면 열전달 면적을 약 2배 정도 증가시켰을 때 메탄전환율은 21.47% 증가하였다. 개질가스 출구단면 평균온도 또한 열전달면적의 증가와 함께 높아졌다. 이를 통해 촉매의 양을 동일하게 하더라도 열원의 고른 배치를 통한 반경방

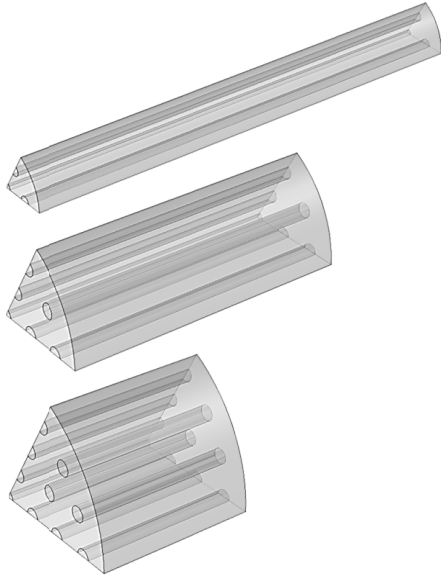


Fig. 9 Computational domain of analysis changed the aspect ratio

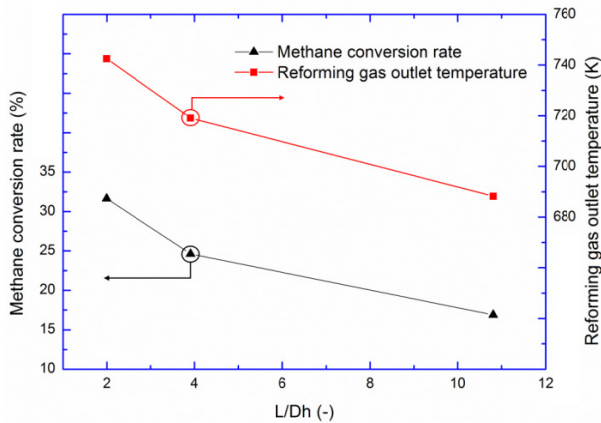


Fig. 10 Methane conversion rate and reforming gas outlet temperature dependence on aspect ratio based on hydraulic diameter

향의 열전달면적 확대는 개질효율을 상승시킴을 확인하였다. 하지만 실제 시스템에서 열전달 면적을 높이기 위하여 열원관의 직경을 작게 하는 것은 압력강하를 야기시킨다. 따라서 이를 위한 압력보상에 대한 고려가 함께 수행되어야 한다.

3.3 종횡비의 영향

열전달을 증대시키는 방법은 수력직경을 크게 하여 반경방향 열전달을 촉진하는 것과 길이를 늘려 길이방향 열전달을 증대시키는 두 가지의 방법이 있다. 저온형 개질기에서 어떠한 경우가 개질반응에 끼치는 영향이 더 클지 알아보고자 열원관의 개수를 7, 19, 37개로 변화시켜 수력반경 D_H 를 늘리는 동시에 길이를 줄이는 방식으로 GHSV는 고정

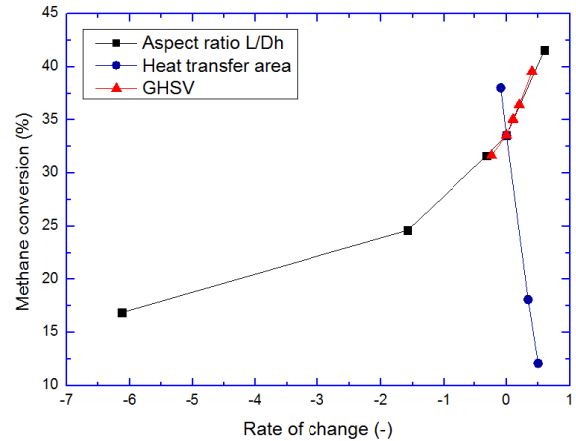


Fig. 11 Methane conversion rate dependence on geometry factor change rate

시킨 채 종횡비를 변화시킨 세가지 해석형상을 Fig. 9와 같이 선정하여 해석을 수행하였다.

종횡비는 길이방향과 반경방향의 열전달을 비교하기 위하여 아래와 같이 수력반경 기준의 종횡비를 정의하여 사용하였다.

$$\phi = \frac{L}{D_H} = L \left(\frac{P}{4A_R} \right) \quad (21)$$

해석결과를 나타낸 Fig. 10을 보면 수력반경 대비 길이가 짧아질 수록 개질영역 출구단 온도가 증가하는 것을 알 수 있다. 또한 이에 따른 메탄 개질률도 함께 증가하였다. 이는 종횡비를 적게하는 것은 반응기의 반경방향 길이를 늘리면서 열원의 관 개수를 증가시킴으로 인해 열전달 면적의 확대 효과를 얻을 수 있기 때문이다. 또한 저온형 개질기의 경우 반응이 일어나는 유효구간이 반응부의 후단에 집중되어있기 때문에 후단의 단면적을 증가시킴으로 인해 고온에 노출되는 개질가스의 체류시간이 늘어났기 때문에 반응이 활발히 일어났음을 알 수 있었다.

4. 결론

본 연구는 제한된 열공급 상황에서 효율을 높일 수 있는 방안을 검토하기 위해 다양한 형상인자 변화에 따른 개질 반응 특성을 연구하였으며, 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 중온형 개질기의 경우 개질 반응은 전체길이 중 개질영역 후단에서 국소적으로 활발히 진행되었다. 그럼에도 불구하고 개질 가스의 체류시간을 늘리는 것은 열전달을 촉진시켜 후단에 도달하는 가스의 온도를 올려주기 때문에 이를 통해 메

탄개질률을 향상시킬 수 있음을 GHSV 변동해석을 통해 확인하였다.

(2) 열전달 면적을 0.0689 m^2 에서 0.1378 m^2 으로 증가시킬 때 메탄전환율은 21.47% 증가하였다. 이를 통해 동일 촉매량을 사용하더라도 반경방향 열전달 면적을 늘리는 방법으로 개질효율을 향상시킬 수 있음을 확인하였다.

(3) GHSV를 고정시킨 상태에서 열원의 개수를 증가시키면서 개질영역의 수력반경 대비 길이를 줄이는 해석결과 저온형 개질기의 경우 반경방향의 열전달이 길이방향의 열전달에 의하여 더 영향을 받았다.

후 기

본 연구는 산업핵심기술개발사업(10049010, 100 kW급 고온 연료전지-엔진 하이브리드 발전시스템 엔지니어링 기술 개발)과 그린카 등 수송시스템산업핵심기술개발사업(10062655, 동적 내구 시험모델을 통한 차량용 연료전지 스택 수명 예측 기술 개발) 일환으로 산업통상자원부의 연구비 지원으로 수행되었습니다.

참고문헌

(References)

- (1) Park, S. H., Lee, Y. D. and Ahn, K. Y., 2014, "Performance Analysis of an SOFC/HCCI Engine Hybrid System: System Simulation and Thermo-economic Comparison," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 39, pp. 1799~1810.
- (2) Veyo, S., 2002, "Tubular Solid Oxide Fuel Cell/Gas Turbine Hybrid Cycle Power Systems," *Journal of Mechanical Design*, Vol. 124, No. 4, pp. 845~849.
- (3) Zafir, M. and Gavriilidis, A., 2003, "Catalytic Combustion Assisted Methane Steam Reforming in a Catalytic Plate Reactor," *Chemical Engineering Science*, Vol. 58, pp. 1967~3960.
- (4) Lee, J. S., Lee, K. H., Yu, S. S., Ahn, K. Y. and Kang, S. G., 2012, "Numerical Analysis of Steam-methane Reforming Reaction for Hydrogen Generation using Catalytic Combustion," *Transactions of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 24, No. 2, pp. 113~120.
- (5) Park, J. G., Lee, S. K., Lim, S. K. and Bae, J. M., 2009, "Numerical Study on Operation Parameters and Shapes of a Steam Reformer for Hydrogen Production from Methane," *Trans. Korean Soc. Mech. Eng. B*, Vol. 33, No. 1, pp. 60~67.
- (6) Xu, J. and Froment, G. F., 1989, "Methane Steam Reforming, Methanation and Water-gas Shift. I: Intrinsic Kinetics," *A.I.Ch.E. Journal*, Vol. 35, pp. 88~96.
- (7) Xu, J. and Froment, G. F., 1989, "Methane Steam Reforming, Methanation and Water-gas Shift. II: Diffusional Limitations and Reactor Simulation," *A.I.Ch.E. Journal*, Vol. 35, pp. 97~103.
- (8) Levent M., Budak G. and Karabulut, A., 1998, "Estimation of Concentration and Temperature Profiles for Methane-steam Reforming Reaction in a Porous Catalyst," *Fuel Process Technol* Vol. 55, pp. 251~263.
- (9) Hsueh, C. Y., Chu, H. S., Yan, W. M., Leu, G. C. and Tsai, J. L., 2011, "Three Dimensional Analysis of a Plate Methanol Steam Micro Reformer and a Methanol Catalytic Combustor with Different Flow Channel Designs," *International journal of hydrogen energy* Vol. 36, pp. 13575~13586.
- (10) Yin, F. X., Ji, S. F., Chen, B. H., Zhao, L. P., Liu, H. and Li, C. Y., 2006, "Preparation and Characterization of $\text{LaFe}_{1-x}\text{Mg}_x\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{FeCrAl}$: Catalytic Properties in Methane Combustion," *Applied Catalysis B: Environmental*, Vol. 66, pp. 265~273.
- (11) Kim, J., Choi, B. and Yi, J., 1999, "Modified Simulation of Methane Steam Reforming in Pd-membrane Packed Bed Type Reactor," *Journal of Chem Eng Japan*, Vol. 32, pp. 760~769.
- (12) White, F. M., 1974, *Viscous Fluid Flow*, McGraw-Hill, New York, pp. 163~189.
- (13) Baek, S. M., Kang, J. H., Lee, K. J. and Nam, J. H., 2014, "A Numerical Study of the Effectiveness Factors of Nickel Catalyst Pellets used in Steam Methane Reforming for Residential Fuel Cell Applications," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 39, pp. 9180~9192.
- (14) Kaihu, H. and Ronald, H., 2001, "The Kinetics of Methane Steam Reforming over a $\text{Ni}/\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ Catalyst," *Chemical Engineering Journal*, Vol. 82, pp. 311~328.