

전산유체해석을 이용한 열교환형 수증기 개질기의 디자인 파라미터 연구

양찬욱¹ · 이율호¹ · 박상현² · 양충모² · 박성진^{1†}

¹홍익대학교 기계공학과 동력 및 에너지 기술 연구실, ²포스코 에너지 연료전지 연구소

Study on the Design Parameters of a Heat Exchange Steam Reformer (HESR) using CFD

CHANUK YANG¹, YULHO LEE¹, SANGHYUN PARK², CHOONGMO YANG², SUNGJIN PARK^{1†}

¹Power & Energy Science Laboratory, Hong-ik Univ. 94, Wowsan-ro, Mapogu, Seoul, 121-719, Korea

²POSCO ENERGY, #13-9 Jukcheon-ri, Heunghae-eup, Buk-gu, Pohang City, 791-941, Gyeongbuk, Korea

Abstract >> In this study, CFD model for a Heat Exchange Steam Reformer (HESR) used for a 10kW SOFC system is developed for the design optimization of the HESR. The model is used to explore the effect of design parameters on the performance of the HESR. In the HESR, heat is delivered from the hot gas channel to the fuel channel to supply the heat required for the fuel reforming. In the fuel channel where the fuel is reformed, thermo-fluid dynamics, heat transfer, and chemical reaction are considered to predict the performance of the reformer. The model is validated with experimental data within 2~3% error. The validated model is used for the parametric study of the HESR design. Channel length, channel diameter, and flow direction are selected as the design parameters. The effects of the HESR design parameters on the outlet temperature, outlet H₂ mole fraction, and pressure drop across the reformer are presented using the model.

Key words : Steam Reformer(수증기 개질기), Solid Oxide Fuel Cell System(고체 산화물 연료전지 시스템), Heat Exchange Steam Reformer(열교환형 수증기 개질기), Computational Fluid Dynamics(전산유체 해석), Design Optimization(디자인 최적화)

Nomenclature

C_p : Heat capacity, J/(kg·K)

J_i : Diffusivity, kg/(m²·s)

k : Heat conductivity, W/(m·K)

K_i : Adsorption constant

K_j : Equilibrium constant

k_j : Kinetic parameter, kmol/(kg_{cat}·h)

M_i : Molar mass, g/mol

P : Pressure, Pa

P_i : Partial pressure, Pa

Q : Heat source, W/m³

R_i : Mass rate of formation, kg/(m³·s)

r_j : Reaction rate, kmol/(kg_{cat}·h)

T : Temperature, K

u : Velocity, m/s

[†]Corresponding author : parksj@hongik.ac.kr

Received : 2016.1.6 in revised form : 2016.2.18 Accepted : 2016.2.28

Copyright © 2016 KHNES

ΔH : Enthalpy change, J/mol

κ : Permeability /m²

μ : Viscosity, kg/(m·s)

ρ : Density, kg/m³

ω_i : Mass fraction

Subscripts

0 : initial condition

c : fuel

cat : catalyst

CH₄ : methane

CO : mono-oxide

CO₂ : dioxide

DEN : denominator

DSR : direct steam reforming reaction

h : hot gas

H₂ : hydrogen

H₂O : vapor

i : species index

j : reaction index

SR : steam reforming reaction

WGS : water gas shift reaction

1. 서 론

최근 화석연료의 고갈로 인해 탄화수소 연료 중 메탄을 현실적인 대체에너지가 될 것이라 예측하고, 대체에너지로 이용하기 위해 많은 국가들이 투자하고 있다¹⁾. 메탄을 대체에너지로서 활용하기 위해 유럽과 일본 등은 에너지 효율이 높은 연료전지에 대한 연구를 진행하고 있다. 연료전지는 크게 스택, 열교환기, 버너, 블로워, 그리고 개질기로 구성되어 있는데, 그중 개질기는 탄화수소를 수소로 변환하기 위해 사용한다.

탄화수소 연료 개질 반응법으로는 크게 세 가지가 있는데, 자열 개질, 부분산화 개질, 수증기 개질 반응

이 있다²⁾. 자열 개질 반응은 반응에 의한 열을 이용해 수증기 개질 반응하는 것이다. 부분산화 개질 반응은 산소를 이용하여 산화시켜 개질 시키는 반응이다. 수증기 개질 반응은 수증기를 이용하는 개질 반응이다. 보통 수증기 개질기는 수증기 개질 반응을 유도하기 위해 연소열을 열원으로 이용한다. 이를 위해 수증기 개질기는 개질기와 버너 또는 개질기와 연소촉매를 모듈화하여 제작한다. 모듈화된 개질기에 대한 연구가 많이 이루어져 있지만,³⁾ 고온의 기체를 열원으로 한 열교환형 개질기에 대한 연구는 많이 이루어져 있지 않다. 본 논문에서는 10kW급 고체산화물 연료전지(SOFC) 시스템에서 사용되는 열교환형 수증기 개질기를 다루었다.

수증기 개질기의 연구로 형상 최적화를 위해 전산유체해석을 이용한 연구⁴⁻⁷⁾가 활발히 진행되고 있다. 신동훈 외 3명은 MCFC용 평판형 개질기에 대한 열유동 전산유체해석을 통해 실험 결과와 시뮬레이션에 대한 검증과 유동 분석을 통해 개질기 성능에 대한 평가를 하였고, 실험과 비교하여 모델의 정확도를 평가하였다⁴⁾. 이정섭 외 4명은 연소 촉매와 모듈화된 개질기에 대한 전산유체해석을 하였다. 그들은 형상에 따른 열전달 특성을 확인하였고 이러한 열전달 특성이 개질 반응에 미치는 영향을 평가하였다⁵⁾. 위와 같이 수증기 개질기의 수치 해석적 연구는 대부분 버너 또는 연소 촉매와 개질기가 모듈화되어 열 교환 하는 형식의 수증기 개질기에 대한 연구이다⁴⁻⁵⁾. 본 논문에서는 CFD(COMSOL®) 기반으로 고온의 기체와 개질 연료가 열교환하는 열교환형 수증기 개질기의 특성을 해석을 통해 파악하였다.

열교환형 개질기에 대한 연구로 Mohammad Irani 외 4명은 개질기 채널에 대한 2차원 전산유체해석을 기반으로 촉매가 코팅되어 있는 벽면에서 반응하는 개질기에 대한 모델을 개발하였다. 그들은 이 모델에서 촉매층 두께를 무시하여 반응하는 경우와, 벽면에 촉매층을 삽입하여 두께를 고려한 반응을 하는 경우

2가지에 대한 차이를 실험 결과와 비교하였다⁶⁾. 박준근 외 3명은 2차원 수증기 개질기에 대해 작동조건과 개질 효율의 상관관계에 대한 연구를 하였다. 그들은 벽면온도, 입구온도, 탄소대비 수증기량 비, 촉매 부피 대비 연료 유량 비, 그리고 직경과 길이에 따른 개질기 성능변화에 대해 연구하였다⁷⁾. 하지만 벽면 온도를 일정온도로 가정해 실제 개질기 내 온도 변화에 의한 영향을 반영하지 못하는 한계를 가지고 있다^{6,7)}. 따라서 본 논문에서는 전산유체해석을 통하여 고온 가스와 연료와의 열교환에 의한 채널 벽면 온도변화의 영향을 예측할 수 있는 모델을 개발하였다. 이 모델은 시험 결과를 통하여 검증하였고, 이 모델을 통하여 개질기의 지름, 길이, 그리고 유동 방향의 변화에 따른 성능 변화를 예측하였다. 전산유체 모델 개발을 위해 화학반응, 열교환, 유체 유동에 대한 다중 물리 해석이 가능한 상용 소프트웨어인 Comsol Multiphysics를 이용하였다.

2. 개질기의 형상 및 모델링 방법

본 논문에서는 10kW 급 SOFC 시스템에 사용되는 열교환형 개질기 모델을 개발하였다. 실제 열교환형 개질기는 Fig. 1과 같이 셸-앤드-튜브 열교환형 형태로 되어 있다. 연료 채널은 관다발 내부에 다공성

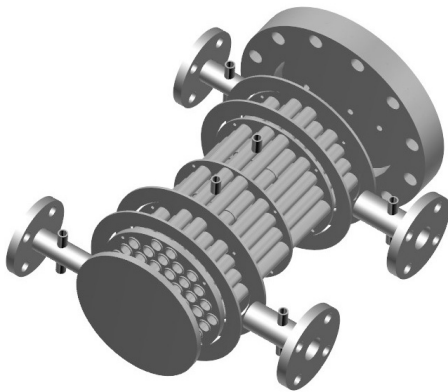


Fig. 1 Shell and tube type heat exchange steam reformer

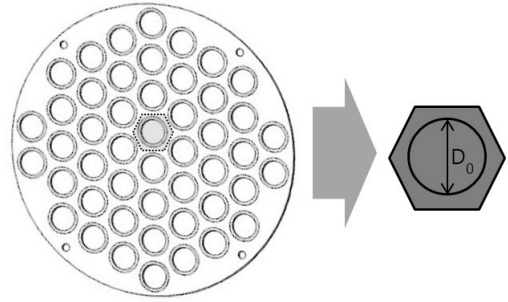


Fig. 2 Cross section of steam reformer

매질의 촉매가 채워져 있고 관 내부에서 연료가 흘러 개질 반응이 일어난다. 관다발 외부에서는 고온의 기체가 흘러 개질 반응에 필요한 열을 공급한다. 고온의 기체는 헤더에서 셸 안으로 유입될 때 사방으로 유입된다.

본 연구에서는 고온 기체 채널의 유동이 균일하다고 가정하였고, 연료 채널은 연료가 튜브에 유입될 때 균일하다고 가정하여 하나의 채널만을 모델링 하였다. 그리고 튜브 벽 두께를 무시하여 형상을 모델링 하였다. Fig. 2와 같이 개질기 셸 내부에 관군이 엇갈림 배열되어 있다. 모델에서 관다발 사이의 유동은 대칭적이라 가정하여 고온 기체 유동 단면을 정육각형으로 설정하였다. 하나의 채널만을 모델링 하였을 때 온도결과는 비교적 유사하지만, 압력차는 헤더와 배플에서도 발생하기 때문에 이에 대해서 연구가 필요하다. 한편 연료 채널은 튜브 내부에 다공성 매질의 촉매층으로 채워져 있어 연료가 공급될 때 튜브 안에서 개질 반응이 일어난다. 고온 기체 채널은 고온의 기체가 들어가 다공성 매질로 채워진 튜브 채널에 열을 공급한다. 연료 채널과 고온 기체 채널의 유동은 서로 반대방향으로 흐르는 대향류 방식으로 열 교환한다. 이후로 다공성 촉매 매질로 채워진 튜브 안쪽부분을 연료 개질부, 튜브 바깥쪽 고온의 기체가 흐르는 곳을 고온 기체부라 하겠다. 고온 기체부에는 고온의 공기가 공급되고, 연료 개질부에 공급되는 연료는 수소, 수증기, 메탄, 일산화탄소, 이

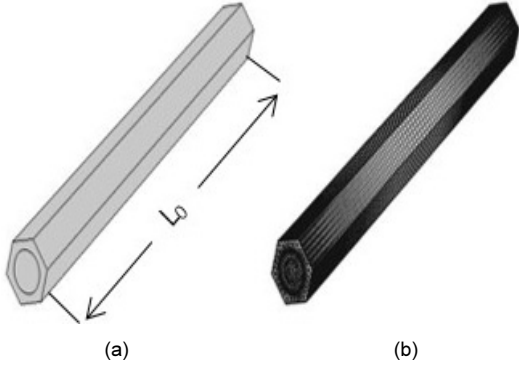


Fig. 3 (a) 3D geometry and (b) employed mesh of steam reformer channel modeled in CFD

산화탄소로 구성이 되어 있다. COMSOL Multiphysics 를 이용해 해석한 열교환형 수증기 개질기 채널의 형상은 Fig. 3(a)와 같다.

해석에 사용된 채널의 메쉬의 개수는 122,000개로 설정하였다. 튜브 벽면에 열교환이 일어나 온도가 변화하기 때문에 표면 부분의 메쉬를 조밀하게 설정하였다. 또한 입·출구 쪽의 온도차가 크고 흡열 반응으로 인해 고온 기체부보다 연료 개질부의 온도가 더 높아질 수 있기 때문에 입·출구 쪽의 메쉬를 중간 부분보다 더 조밀하게 설정하였다. 모델에서 사용된 메쉬는 Fig. 3(b)에 나타내었다.

2.1 고온 기체부 모델

고온 기체부는 고온의 기체가 흘러 연료 개질부에 필요한 열을 공급한다. 고온 기체부는 공기로 설정하였고 온도에 따른 물성치 변화가 반영되었다.

고온 기체부에 대한 지배방정식은 질량보존 방정식, Navier - Stokes 방정식, 그리고 에너지 평형 방정식으로 구성되어 있다. 기체의 속도와 압력은 질량보존 방정식과 Navier - Stokes 방정식을 통해 구할 수 있다. 이에 대한 식은 다음과 같다.

$$\nabla \cdot (\rho_h \cdot \mathbf{u}_h) = 0 \quad (1)$$

Table 1 Boundary conditions for hot air part

Boundary	Condition 1	Condition 2
Inlet	$\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = v_{0_h}$	$T_h = T_{0_h}$
Outlet	$P = P_0$	$-\mathbf{n} \cdot (-k \nabla T_h) = 0$
Tube wall	$\mathbf{u} = 0$	$q = -h_t(T_h - T_c)$
External surface	$\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = 0$	$-\mathbf{n} \cdot (-k \nabla T_h) = 0$

$$\rho_h (\mathbf{u}_h \cdot \nabla) \mathbf{u}_h = \nabla [-P_h I + \mu_h (\nabla \mathbf{u}_h + (\nabla \mathbf{u}_h)^T)] \quad (2)$$

고온 기체부의 온도는 에너지 평형 방정식을 통해 구할 수 있다. 이에 대한 식은 다음과 같다.

$$\rho_h C_{p_h} \mathbf{u}_h \cdot \nabla T_h = k_h (\nabla^2 T_h) \quad (3)$$

고온 기체부 모델에서 적용된 지배방정식에 대한 경계 조건은 Table 1에 정리하였다. 고온 개질부 바깥쪽 벽면은 대칭유동이라 가정하여 경계 조건을 단열로 하였다.

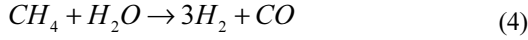
2.2 연료 개질부 모델

연료 개질부는 튜브 내부에 다공성 촉매 매질로 채워져 있고, 이 촉매는 개질 반응을 유도한다. 해석에 이용된 모델에서 연료 개질부는 단일관의 다공성 매질 유동으로 가정하였다. 연료 개질부 모델은 화학 반응, 질량보존, Darcy 법칙, 그리고 에너지 평형 방정식으로 구성된다.

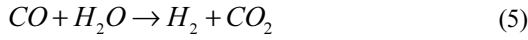
2.2.1 화학 반응식과 반응을

개질 반응을 해석하기 위하여 Xu & Froment가 제시한 수증기-메탄 반응 매커니즘을 사용하였다⁸⁾. Xu & Froment는 개질 반응에서 일어날 수 있는 11가지 반응식을 제시하였고 그 중에 수증기 개질 반응(Steam Reforming, SR), 수성 가스 전환 반응(Water Gas Shift,

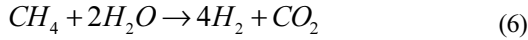
WGS), 직접 수증기 개질 반응(Direct Steam Reforming, DSR) 이 3가지의 반응이 결정적인 역할을 한다고 가정하였다. 수증기 개질 반응(SR)은 다음 화학 반응식으로 나타낸다.



위 반응식에 대한 표준반응 엔탈피는 $\Delta H^\circ = +206 \text{ kJ/mol}$ 으로, 흡열반응이 일어나 연료 개질부 온도를 낮춘다. 그리고 수성 가스 전환 반응(WGS)은 다음 화학 반응식으로 나타낸다.



위 반응식에 대한 표준반응 엔탈피는 $\Delta H^\circ = -41 \text{ kJ/mol}$ 으로, 발열반응이 일어난다. 그리고 직접 수증기 개질 반응 (DSR)은 다음 화학 반응식으로 나타낸다.



위 반응식에 대한 표준반응 엔탈피는 $\Delta H^\circ = +165 \text{ kJ/mol}$ 으로, 흡열반응이 일어난다.

또한 Xu & Froment는 위에 제시한 3가지 반응에 대해서 정반응과 역반응이 반영된 반응률의 계산식을 제안하였다⁸⁾. 이들의 반응률은 평형, 흡착, 분율을 고려하였고, 이들의 식은 다음과 같다.

$$r_{SR} = \frac{k_{SR}}{P_{H_2}^{2.5}} \frac{P_{CH_4} P_{H_2O} - P_{H_2}^3 P_{CO} / K_{SR}}{(DEN)^2} \quad (7)$$

$$r_{WGS} = \frac{k_{WGS}}{P_{H_2}} \frac{P_{CO} P_{H_2O} - P_{H_2} P_{CO_2} / K_{WGS}}{(DEN)^2} \quad (8)$$

$$r_{DSR} = \frac{k_{DSR}}{P_{H_2}^{3.5}} \frac{P_{CH_4} P_{H_2O}^2 - P_{H_2}^4 P_{CO_2} / K_{DSR}}{(DEN)^2} \quad (9)$$

Table 2 ⁹⁾Parameters of intrinsic rate equations

Kinetic parameter, $k_j = k_{oj} \times \exp(-E_j / RT_c)$		
Reaction	k_{oj} [kmol/kgcath]	E_j [kJ/mol]
SR	$4.225 \times 10^{15} \text{ bar}^{0.5}$	240.1
WGS	$1.955 \times 10^6 \text{ bar}^{-1}$	62.19
DSR	$1.020 \times 10^{15} \text{ bar}^{0.5}$	243.9
Equilibrium constant, K_{ej}		
Reaction	K_{ej} [kJ/mol]	
SR	$5.75 \times 10^{12} \exp(-11476/T_c)$	
WGS	$1.26 \times 10^{-2} \exp(4639/T_c)$	
DSR	$7.24 \times 10^{10} \exp(-21646/T_c)$	
Adsorbtion constant, $K_i = k_{oi} \times \exp(-\Delta H_i / RT_c)$		
Species	K_{oi} [bar ⁻¹]	H_i [kJ/mol]
CH ₄	6.65×10^{-4}	-38.28
CO	8.23×10^{-5}	-70.65
H ₂ O	$1.77 \times 10^5 \text{ bar}$	-88.68
H ₂	6.12×10^{-9}	-82.90

$$DEN = 1 + K_{CO} P_{CO} + K_{H_2} P_{H_2} + K_{CH_4} P_{CH_4} + K_{H_2O} P_{H_2O} / P_{H_2} \quad (10)$$

반응률에 있는 평형상수, 흡착계수와 반응속도에 대한 상수와 식들은 Table 2에 나타내었다⁹⁾.

2.2.2 연료 개질부의 지배방정식

연료 개질부에 대한 지배방정식은 질량보존 방정식, Darcy의 법칙, 에너지 평형 방정식, 그리고 종 보존 방정식으로 구성되어 있다. 속도와 압력은 Darcy의 법칙과 질량보존 방정식을 통해서 구할 수 있고, 기체는 모두 이상기체로 가정하였다. Darcy의 법칙과 질량보존 방정식은 다음과 같다.

$$\nabla \cdot (\rho_c \cdot \mathbf{u}_c) = 0 \quad (11)$$

$$\mathbf{u}_c = -\frac{K}{\mu_c} \nabla P_c \quad (12)$$

또한 개질 반응에 의한 반응열을 반영한 에너지 평형 방정식을 통해 연료 개질부의 연료 온도를 구할 수 있다. 이에 대한 식은 다음과 같다.

$$\rho_c C_{p_c} \mathbf{u}_c \cdot \nabla T_c = k_{eff} (\nabla^2 T_c) + Q \quad (13)$$

연료개질부의 에너지 평형 방정식은 연료와 다공성 매질을 고려해야 하기 때문에 방정식에서 사용된 열전도도는 유효 열전도도(k_{eff})로 나타낸다. 유효 열전도도는 다공성 매질과 연료의 비율에 따라서 달라진다. 이러한 비율은 다공도로써 나타내었고, 유효 열전도도는 다음과 같이 다공도의 함수로 나타낸다.

$$k_{eff} = \varepsilon k_c + (1 - \varepsilon) k_{cat} \quad (14)$$

여기서 k_c 는 연료의 열전도도, k_{cat} 는 촉매의 열전도도, 그리고 ε 은 다공성 매질의 다공도이다.

연료 개질부에서는 화학반응에 의해 조성의 변화가 일어난다. 이로 인해 화학 반응에 의한 흡열 및 발열이 발생한다. 식 (13)의 반응열 (Q)는 다음과 같이 계산된다¹⁰⁾.

$$Q = \rho_{cat} (\Delta H_{SR} r_{SR} + \Delta H_{WGS} r_{WGS} + \Delta H_{DSR} r_{DSR}) \quad (15)$$

여기서 촉매의 밀도는 $\rho_{cat} = 80 \text{ kg/m}^3$ 로 설정하였다. ΔH_{SR} , ΔH_{WGS} , 그리고 ΔH_{DSR} 은 각각 수증기 개질 반응, 수성 가스 전환반응, 그리고 직접 수증기 개질반응에 대한 반응 엔탈피로, 식 (4), (5), (6) 식의 표준 반응 엔탈피 값이다.

그리고 H_2 , H_2O , CH_4 , CO , CO_2 로 구성된 연료의 조성은 종 보존 방정식을 통해 구할 수 있다. 이에 대한 식은 다음과 같다.

$$\rho_c (\mathbf{u}_c \cdot \nabla) \omega_i = -\nabla \cdot \mathbf{J}_i + R_i \quad (16)$$

Table 3 Boundary conditions for fuel reforming part

Inlet	$\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = v_{0_c}$	$T_h = T_{0_c}$
Outlet	$P = P_0$	$-\mathbf{n} \cdot (-k \nabla T_h) = 0$
Tube wall	$\mathbf{u} = 0$	$q = h_t (T_h - T_c)$

한편 개질 반응에 의해서 H_2 , H_2O , CH_4 , CO , CO_2 의 질량 분율이 변하는데, 이는 식 (16)에서 mass rate of formation (R_i)에 의해 변한다. Mass rate of formation은 다음과 같이 계산된다.

$$R_{\text{H}_2} = \rho_{cat} (3r_{SR} + r_{WGS} + 4r_{DSR}) M_{\text{H}_2} \quad (17)$$

$$R_{\text{H}_2\text{O}} = \rho_{cat} (-r_{SR} - r_{WGS} - 2r_{DSR}) M_{\text{H}_2\text{O}} \quad (18)$$

$$R_{\text{H}_2} = \rho_{cat} (3r_{SR} + r_{WGS} + 4r_{DSR}) M_{\text{H}_2} \quad (19)$$

$$R_{\text{CO}} = \rho_{cat} (r_{SR} - r_{DSR}) M_{\text{CO}} \quad (20)$$

$$R_{\text{CO}_2} = \rho_{cat} (r_{WGS} + r_{DSR}) M_{\text{H}_2} \quad (21)$$

여기서 촉매의 밀도는 앞에서 반응열 소스항(Q)에 적용된 값과 동일하다. 연료 개질부 모델에서 적용된 지배방정식에 대한 경계 조건은 Table 3에 나타내었다.

3. 모델의 실험적 검증

모델 검증을 위해서 온도 실험 데이터와 물분율 실험 데이터를 이용하였고, 이를 시뮬레이션 결과와 비교하여 검증하였다. 고온 기체부와 연료 개질부의 시뮬레이션 값은 단면적 평균값으로 나타내었다. 실험으로 측정된 온도와 물분율의 위치는 Fig. 4에 나타내었다. 고온 기체부의 실험데이터는 셀-앤드-튜브 열교환형 개질기 매니폴드의 출구 온도 데이터이다. 연료 개질부의 실험 데이터는 셀-앤드-튜브 열교환형 개질기 매니폴드의 출구 물분율 데이터와 튜브

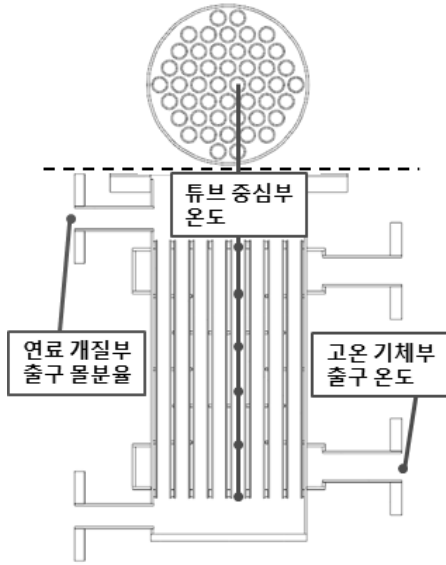


Fig. 4 Experimental measurement locations of heat exchange steam reformer

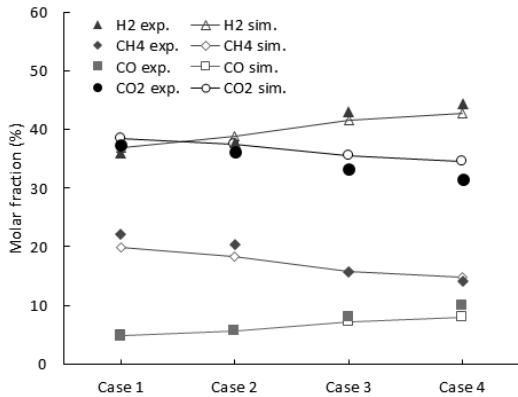


Fig. 5 Comparison of outlet molar fraction between experiment and simulation

내부 중심부분의 온도데이터이다. 튜브 내부 중심 부분의 온도는 튜브 한 개에 대한 데이터인데, 이 튜브는 셀-앤드-튜브 열교환형 개질기의 중심부와 가장 가까운 튜브이다. 한편 동일 형상의 모델을 입구 온도에 따라 4가지 Case로 분류하여 검증하였다. 4가지의 Case는 Table 4에 나타내었다.

연료 개질부의 물분율 검증은 Fig. 5에 나타내었다. 실제 다공성 매질에 들어간 연료는 H₂, H₂O, CH₄,

Table 4 Operating conditions of 4 cases

		Cases			
		1	2	3	4
Temperature inlet ()	Hot gas	574	593	686	738
	Fuel	428	473	471	456
Mole Fraction inlet	H ₂	0.162			
	H ₂ O	0.41			
	CH ₄	0.152			
	CO	0.053			
	CO ₂	0.223			
Mass flow (NLPM)	Hot gas	7.0			
	Fuel	4.67			
Length (mm)		360			
Flow direction		Counter flow			

CO, CO₂로 구성되었지만, 실험 데이터가 있는 H₂, CH₄, CO, CO₂로 검증하였다. CO를 제외한 나머지 물분율의 오차는 10%내외로 전체적으로 비슷한 경향을 나타내었다. CO는 Case 4에서 약 18%의 오차가 발생하였다. 그러나 이는 CO의 물분율이 적게 측정되어 상대적으로 오차가 크게 나왔기 때문에, 설계 인자에 따른 성능변화의 경향을 파악하는 데에 크게 영향을 미치지 않는다.

각 Case의 고온 기체부와 연료 개질부의 온도 검증 결과는 Fig. 6에 나타내었다. 각 case의 연료 개질부 온도는 평균 2~3%의 오차를 나타내었다. 연료가 흐르는 다공성 매질의 열전달은 열전도도와 비열이 중요한 변수로 작용한다. 열전도도와 비열은 온도, 다공도, 조성비에 따라서 매우 복잡하게 변해 모델로 구현하기 어렵다. 이로 인해 본 연구에서는 연료 개질부 온도에 대한 오차가 발생할 것이라 판단된다.

4. 형상과 유동 방향 변화가 개질기 성능에 미치는 영향

열교환형 수증기 개질기의 설계 인자에 따른 성능 변화에 미치는 영향을 파악하기 위해 연료개질부의 튜브 길이, 튜브 지름 그리고 유동배열을 변화시켰

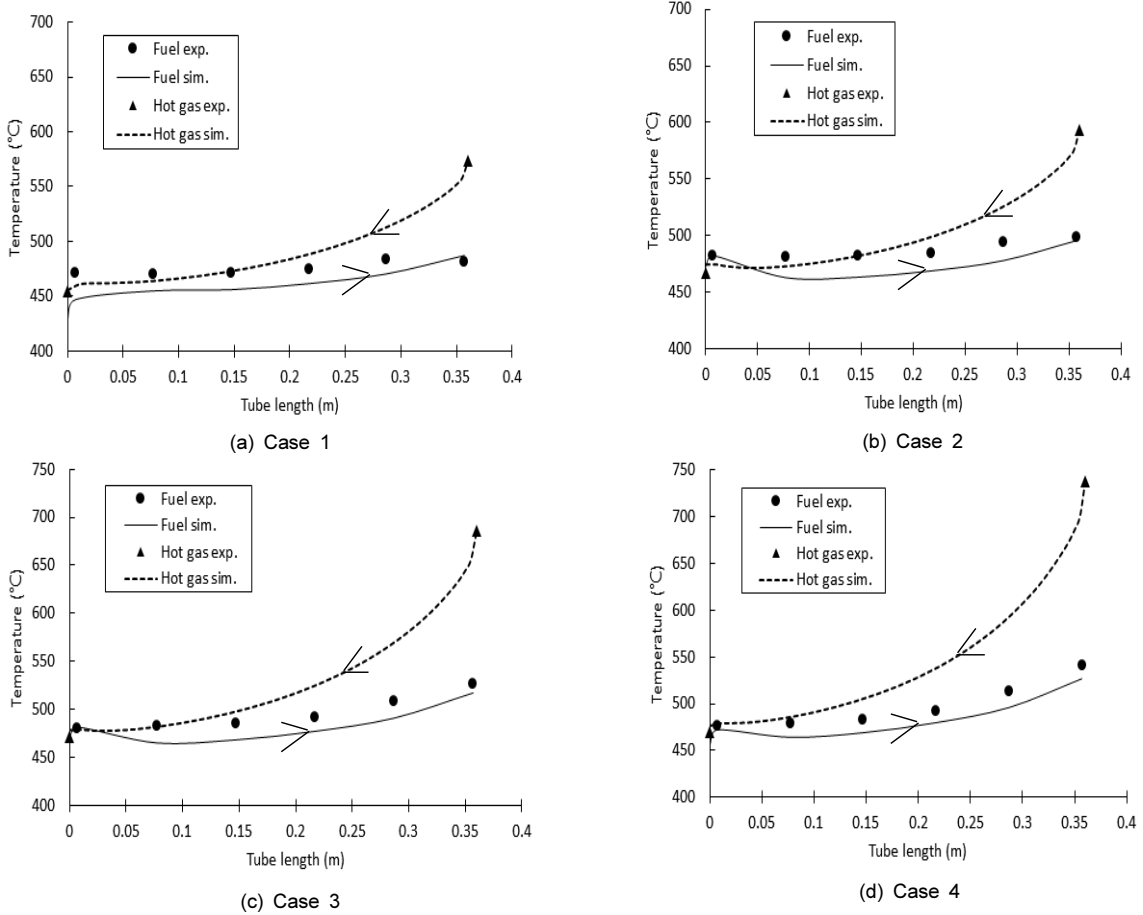


Fig. 6 Comparison of fuel and hot gas temperature between experiment and simulation

다. 고온 기체부와 연료 개질부의 입구조건과 유동방향은 Table 4의 Case 3을 기준으로 하였다. 튜브 길이, 지름은 Fig. 2에 나타내었고, 이에 대한 변화를 정규화 시켜 나타냈다. 튜브 길이와 지름의 기준은 각각 $L_0=360$ mm 그리고 $D_0=18.4$ mm이다. 유동배열을 대향류 유동에서 평행 유동으로 바꾸기 위해 고온 기체부의 입구와 출구의 경계조건을 뒤바꿔 해석하였다. 설계 인자에 따른 성능의 변화를 알기 위해서 연료 개질부의 출구 H_2 몰분율의 변화를 비교하였다. H_2 몰분율은 H_2 , H_2O , CH_4 , CO , CO_2 로 구성된 연료에 대한 몰분율이다.

4.1 튜브 길이의 영향

Fig. 7(a)는 $L_0=360$ mm를 기준으로 길이변화의 상대적 비율이 0.6에서 1.2까지 변하는 경우에 따른 출구의 온도 결과를 나타낸 것이다. 일정 길이 이상이 될 경우 열교환이 어느 정도 이루어져서 길이가 길어져도 열교환량이 크게 증가하지 않는다. 이는 고온 개질부의 출구온도와 연료 개질부의 입구온도가 비슷해졌기 때문이다. 연료 개질부에서 흡열반응으로 인해 연료 개질부의 온도가 낮아지고 이에 따라 벽면에 더 큰 열유속이 유입된다. 이로 인해 튜브의

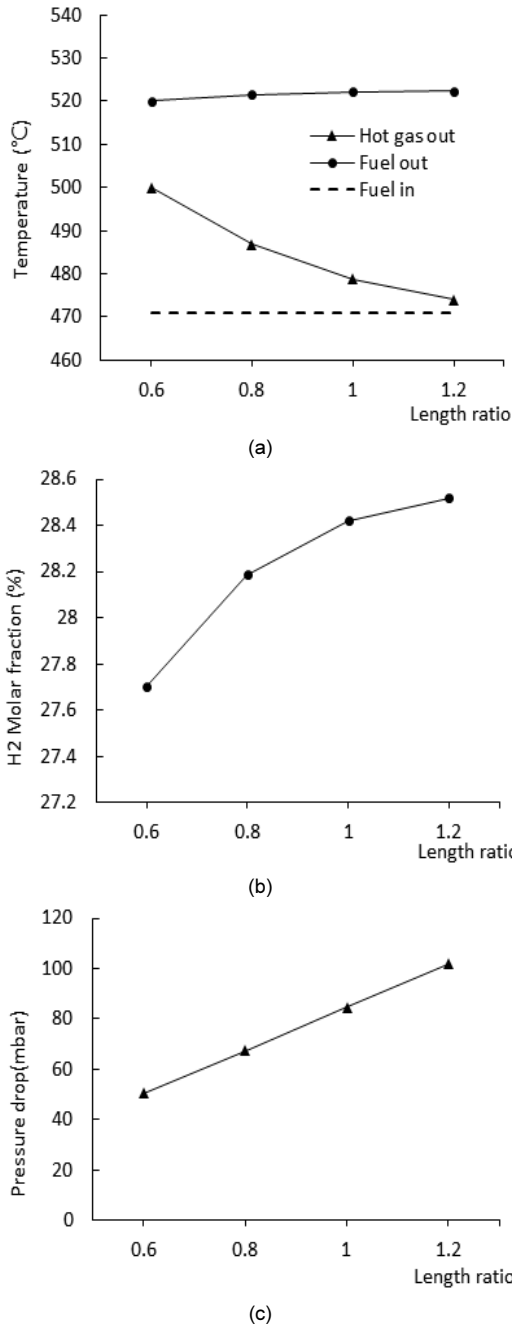


Fig. 7 Effect of tube length on (a) the temperature and (b) H2 mole fraction of outlet, and (c) pressure drop

중간 부분에서 열교환이 잘 이루어지고, 고온기체부의 온도가 연료 개질부의 온도와 비슷해져, 대향류 유동 특성상 열교환량이 크게 변하지 않는다.

Fig. 7(b)은 길이변화에 따른 출구의 H₂몰분율 결과를 나타낸 것이다. 원래 길이에서 줄어 들면 H₂몰분율이 감소하였고 감소량도 증가하였다. 길이가 증가할수록 H₂몰분율이 증가하였지만 출구 몰분율은 수렴하였다.

Fig. 7(c)은 길이변화에 따른 연료 개질부의 압력차를 나타낸 것이다. 다공성 매질 특성상 압력을 크게 줘야 유동이 일어나기 때문에 길이를 늘리면 선형적으로 압력차가 크게 증가한다. 이는 일정 길이 이상을 늘리면 열전달량과 H₂몰분율 증가량에 비해서 압력강하가 더 커져서 한계점이 있다는 것을 알 수 있다.

4.2 튜브 지름의 영향

Fig. 8(a)은 D₀=18.4 mm를 기준으로 튜브 지름변화의 상대적 비율이 0.8에서 1.2까지 변하는 경우에 따른 출구의 온도 결과를 나타낸 것이다. 지름이 커질수록 고온 기체부 출구의 온도가 감소하였고, 연료 개질부의 출구 온도는 근소하게 증가하였다. 이는 연료 개질부의 튜브 지름이 커질수록 열교환 면적이 커지고, 같은 입구조건에서 지름이 커질수록 연료 개질부의 유속이 느려져 열교환량이 더 커졌기 때문이다.

Fig. 8(b)은 연료 개질부의 튜브 지름 변화에 따른 H₂몰분율 결과를 나타낸 것이다. 튜브의 지름이 커질수록 열교환량이 커졌기 때문에 이에 따라 수증기 개질 반응도 촉진되어 H₂몰분율이 증가하였다. 그러나 H₂몰분율의 증가량은 수렴하였다. 이는 열교환량이 더 이상 크게 증가할 수 없기 때문이다. 연료 개질부에서 일어나는 흡열과 발열 반응으로 인해 Fig. 8(a)에서 상대적 비율이 1.2일 때 고온 기체부의 출구 온도가 연료 개질부의 입구 온도보다 더 낮은 결과가 나와 열교환이 역전되는 현상이 발생하였다. 다시 말해 더 이상 열교환이 크게 증가할 수 없고, 이에 따라 H₂몰분율 증가량이 감소하게 된 것이다.

Fig. 8(c)은 튜브 지름 변화에 따른 연료 개질부의

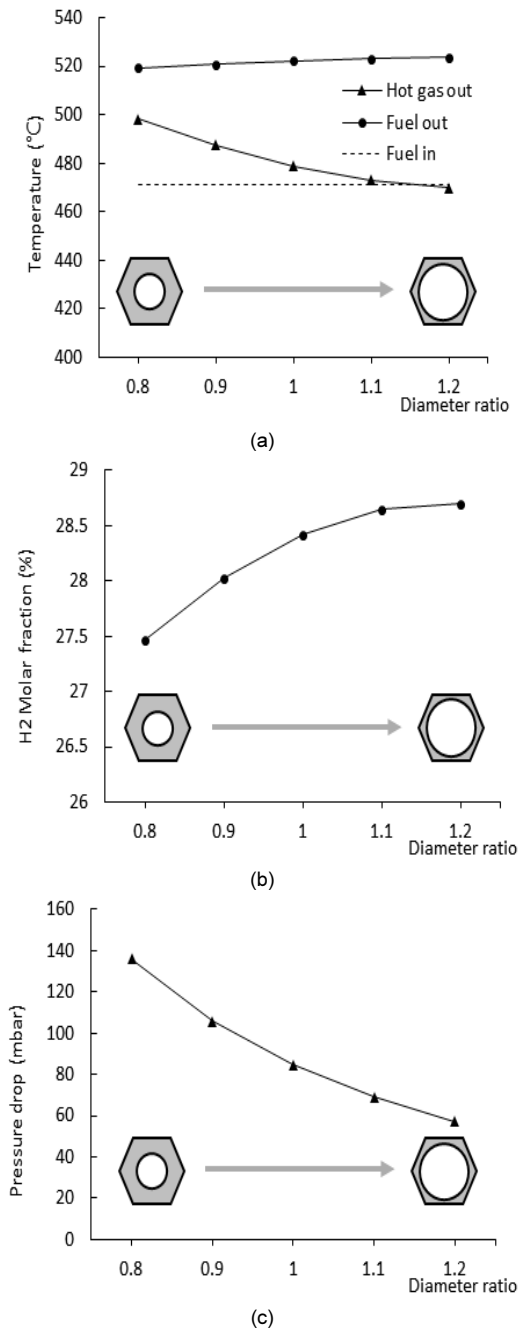


Fig. 8 Effect of tube diameter on (a) the temperature and (b) H2 molar fraction of outlet, and (c) pressure drop

압력 차를 나타낸 것이다. 동일 운전조건 하에 지름의 크기가 커질수록 연료 개질부의 유속이 줄어들어 압력 차는 감소한다. 반대로 지름의 크기가 작아질수

록 유속이 커지고 이에 따라서 압력 차가 크게 증가한다.

4.3 유동 배열에 따른 영향

Fig. 9(a)는 유동 배열에 따른 출구의 온도를 나타낸 것이다. 대향류 유동(Counter-flow) 배열에 비해 평행 유동(Co-flow) 배열로 열교환이 일어날 때 연료 개질부의 출구 온도는 감소를 하였지만, 고온 기체부의 출구 온도는 증가하였다. Fig. 9(b)는 유동 배열에 따른 출구의 H₂몰분율을 나타낸 것이다. 여기서 연료 개질부의 출구 온도는 대향류 유동에 비해 평행 유동이 낮지만, 출구 H₂몰분율은 오히려 증가하였다. 그 이유는 Fig. 10을 통해 설명이 가능하다.

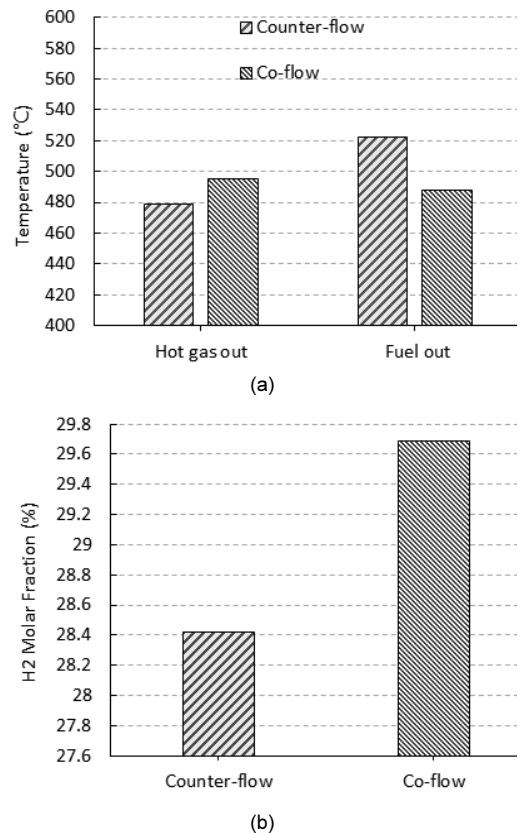


Fig. 9 Effect of Flow direction on (a) the temperature and (b) H2 molar fraction of outlet

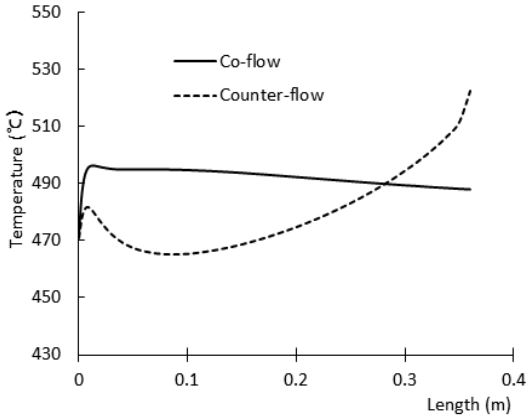


Fig. 10 Gas temperature distribution in fuel reforming parts depending on flow directions

Fig. 10은 대향류와 평형 유동 각각 연료 개질부 중심의 온도를 시뮬레이션 한 결과이다. 연료 개질부가 열교환 하는 중간 부분에서는 평형 유동 배열일 때의 온도가 더 높게 나오는 것을 알 수 있다. 수증기 개질(SR) 반응은 흡열 반응이고, 온도가 높을수록 반응이 촉진 되므로 연료 개질부는 열교환 하는 입구와 중간 부분에서 더 많은 열전달로 인하여 평형 유동 배열에서 더 많이 반응이 일어났다고 할 수 있다.

한편 연료 개질부의 출구의 온도는 대향류 유동 배열에서 더 높다. 그럼에도 평형 유동에서 출구의 H₂몰분율이 더 높게 나왔다. 이는 연료개질부의 출구와 가까운 쪽에서는 반응속도보다 열전달률이 더 빠르게 일어났고, 동시에 H₂몰분율은 평형에 도달하기 전에 출구에 나왔기 때문이다. 따라서 열교환을 적게 하면서도 출구의 H₂몰분율이 더 높게 나오는 것이다.

5. 결 론

형상 변화가 열교환형 수증기 개질기에 미치는 영향을 분석하기 위해서 CFD 모델을 개발하였고, 이에 대한 검증을 진행하였다. 모델 검증을 위해서 온도와

몰분을 실험 데이터를 이용해 시뮬레이션 결과와 비교하여 검증하였다. 검증된 모델을 이용하여 설계 인자의 영향을 살펴보고, 그 결과는 다음과 같다.

- 1) 튜브 길이를 증가시키면 일정 길이 이상에서는 열교환이 어느 정도 이루어져서 연료 개질부의 출구 온도는 크게 변하지 않고, 출구의 H₂몰분율의 증가도 수렴한다. 그러나 길이가 길어지면 압력강하가 선형적으로 증가하기 때문에 설계시 성능과 압력 강하 사이의 트레이드 온도를 고려해야 한다.
- 2) 튜브 지름을 증가시킬 때, 연료 개질부의 출구 온도는 증가한다. 한편 연료 개질부의 출구 H₂몰분율은 지름의 크기가 커질수록 증가하지만, 증가량은 수렴한다. 지름이 작아질수록 연료 개질부의 속도가 증가하기 때문에 압력강하가 매우 크게 증가한다.
- 3) 평형유동의 경우 출구의 H₂몰분율은 대향류 유동의 경우보다 1% 이상 크게 나온다. 이는 본 연구에서 사용한 열교환형 수증기 개질기의 모델에 따르면 중심부의 온도는 열교환 하는 중간 부분에서 평형유동의 경우가 대향류 유동의 경우보다 더 높기 때문에 출구의 H₂몰분율의 차이가 발생한다. 한편 평형 유동의 경우 연료 개질부의 출구 온도는 대향류 유동의 경우보다 감소하고 고온 기체부의 출구온도는 대향류 유동의 경우보다 증가한다.

후 기

본 연구는 산업자원부의 재원으로 한국에너지 기술평가원(KETEP)의 지원을 받은 “10kW급 건물용 SOFC(고체산화물 연료전지) 시스템 실증(No.20143010031810)” 과제 일환으로 수행되었습니다.

References

1. Patric O. Graf et al. 3, "Comparative study of steam reforming of methane, ethane and ethylene on Pt, Rh and Pd supported on yttrium-stabilized zirconia", *Applied Catalysis : General* 332, 2007.
2. O'Hayre, R.P., Cha, S., Colella, W., "Fuel cell fundamentals", Wiley Press.
3. James Larminie, Andrew Dicks, "Fuel cell Systems explained" John Wiley & Soms, LTD, 2000.
4. D. H. Shin, H. G. Seo, H. C. Lim, S. D. Lee, "Computational Fluid Dynamics Analysis of Plate Type Reformer for MCFC" *Transactions of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, 2006, v.17 no.4.
5. J. S. Lee, K. H. Lee, S. S Yu, K. Y. Ahn, S. G. Kang, "Numerical Analysis of Steam methane Reforming Reaction for Hydrogen Generation using Catalytic Combustion" *Transactions of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, 2013, v.24 no.2.
6. Mohammad Irani et al. 4, "CFD modeling of hydrogen production using steam reforming of methane in monolith reactors : Surface or volume-base reaction model?", *International Journal of Hydrogen Energy* 36 , 2011.
7. J. G. Park, S. K Lee, S. K. Lim and J. M. Bae, "Numerical Study on Operating Parameters and Shapes of a Steam Reformer for Hydrogen Production from Methane", *Trans. Korean Soc. Mech. Eng. B*, 2008, v.33.
8. J. Xu, G. F. Froment, "Methanation and Water-Gas Shift: 1. Intrinsic Kinetics" *Journal of AiChE.*, 1989, Vol. 35 No. 1.
9. D. L. Hoang, S. H. Chan, and O. L. Ding, "Kinetic and Modeling Study of Methane Steam Reforming Over Sulfide Nickel Catalyst on a Gamma Alumina Support," *Journal of Chemical Engineering*, 2005, Vol 112 No. 1/3, pp. 1-11.
10. Keyur S. Patel, Aydin K. Sunol, "Dynamic behavior of methane heat exchange reformer for residential fuel cell power generation system", *Journal of Power Sources* 161, 2006.