

## KW급 SOFC 시스템용 개질기 최적화

이 용<sup>1</sup> · 박세진<sup>1</sup> · 김민수<sup>1</sup> · 신장식<sup>2</sup> · 신석재<sup>1,†</sup>

<sup>1</sup>경동나비엔 Air Design 연구소, <sup>2</sup>신빅앤티테크

## A Study on Optimization of Reformer for kW Class SOFC System

YONG YI<sup>1</sup>, SE JIN PARK<sup>1</sup>, MIN SOO KIM<sup>1</sup>, JANG SIK SHIN<sup>2</sup>, SEOCK JAE SHIN<sup>1,†</sup>

<sup>1</sup>Air Design Research Center, KD Navien, 205-38 Gasan digital 1-ro, Geumcheon-gu, Seoul 08501, Korea

<sup>2</sup>SN&T, 1662 Yuseong-daero, Yuseong-gu, Daejeon 34054, Korea

<sup>†</sup>Corresponding author :  
sjshin@kdiwin.com

Received 22 June, 2018

Revised 14 August, 2018

Accepted 31 August, 2018

**Abstract >>** Solid oxide fuel cell (SOFC) operates at high temperature, therefore has the advantage of higher power generation and using exhaust heat than other fuel cells. In particular, the reforming reaction can be performed inside the SOFC stack to reduce the cooling of the stack and the burden on the reformer reactor. In this study, the reformer structure, operating characteristics, and thermal efficiency were evaluated for the optimization design of a heat exchanger type reformer of a 1 kW SOFC system.

**Key words :** Fuel cell(연료전지), SOFC(고체산화물 연료전지), Refomer(개질기), Internal reforming(내부 개질), System efficiency(시스템 효율)

## Nomenclature

BOG : burner off gas

BOP : balance of plant

TDR : turn down ratio

## 1. 서론

고체산화물 연료전지(solid oxide fuel cell, SOFC)는 고온에서 이온전도성이 있는 물질을 전해질로 사용하는 연료전지이다. 고온에서 운전되므로 발전효율이 높고 배열 제어조건이 넓어 열병합 발전이 가능하다. 연료전지 스택이 600-1,000°C에서 운전되

로 연료극에 수소뿐 아니라 메탄, 가솔린, 바이오가스, 메탄올, 에탄올 등 다양한 연료 사용이 가능하여 연료로 수소만 공급해야 하는 저온형 연료전지에 비하여 연료 선택폭이 넓다<sup>1)</sup>.

연료극 물질이 개질 촉매와 유사한 특성을 가지므로 연료극에서도 개질 반응을 유도할 수 있으며 이 경우 개질기 부하가 감소하여 개질 반응을 위하여 개질기로 공급하는 열량 감소가 가능하고 시스템 효율 증가 효과를 얻을 수 있다.

연료전지의 전극 반응은 발열 반응으로 연료전지 스택을 지속적으로 운전하기 위해서는 연료전지 스택의 냉각이 필요하다. 저온형 연료전지는 냉각 효율이 좋은 액체를 냉매로 사용 가능하므로 시스템 부

피와 운전에 문제가 없으나 SOFC와 같은 고온형 연료전지는 액체 냉매 사용이 불가능하여 일반적으로 공기극에 공급하는 공기 유량, 별도의 냉각 장치를 사용하는 방법이 있으나 연료전지 스택 온도가 용이하지 않다.

연료의 개질 반응은 대표적인 흡열 반응으로 흡열 반응열이 크기 때문에 개질 반응이 일어나는 위치를 개질기와 연료전지 스택으로 적절하게 배분하면 개질기로 공급하는 에너지를 절감할 수 있으며 내부 개질을 통하여 연료전지 스택을 냉각할 수 있으므로 시스템 전체 에너지 효율을 올릴 수 있다.

내부 개질 방법으로는 직접 내부 개질과 간접 내부 개질로 나눌 수 있는데 연료전지 스택 내부에 개질 구간이 별도로 있는 경우와 없는 경우로 구분한다. 스택 내부에 개질 구간이 없는 경우에는 스택 전극 물질에서 개질 반응이 일어나게 된다. 두 가지 경우 모두 내부 개질을 100% 하지 않으므로 외부 개질기는 별도로 설치하며 다만 내부 개질을 제외한 역할을 외부 개질기가 담당하도록 설계한다.

연료전지 운전시 생성물은 전기, 열, 물이 있으며 전기와 열이 전체 공급 에너지의 85-90%를 차지한다. 개질기로 공급하는 열량이 감소하면 연료전지 시스템에 공급하는 에너지가 감소하므로 시스템 종합 효율을 증가시키는 효과가 있다.

연료전지 시스템의 종합 효율을 높이고 제어 범위를 넓게 유지하려면 내부 개질 비율, 개질기 부피 감소, 개질기의 열효율 증가, 개질기의 최대 전환율 상승 등이 필요하며 이를 통하여 개질기와 시스템의 turn down ratio (TDR)를 넓게 확보하고 효율과 안정성을 높이게 된다. 연료전지 시스템의 종합효율은 발전효율과 열효율의 합으로 정의하며 개질기의 열효율은 시스템 효율에 직접적으로 영향을 미치게 된다.

본 연구의 개질기는 kW급 SOFC 시스템의 핫박스 용으로 설정하였다. 개질기에서 개질 반응에 필요한 에너지는 버너로부터 열교환 방식으로 공급받는 열교환기형 개질기가 적용되며 개질기에서 배출되는 배열은 후단의 Balance of Plant (BOP)가 이용하도록 설계하였다.

개질기의 열효율을 높이기 위하여 개질기의 전환율을 선정하고 그에 필요한 반응열로부터 개질기에 공급할 에너지를 계산한다. 개질기의 열효율이 낮을 경우 후단 BOP에 에너지가 부족하게 되어 추가 연료 공급으로 인하여 시스템 효율은 낮아지게 된다.

열교환기형 개질기의 열효율을 높이기 위해서는 공급 열량을 유지하면서 열교환기형 개질기의 배열을 높게 유지해야 하므로 개질기 내부 촉매층의 열분포 및 열 부하 최적화가 필요하다. 열 분포를 균일하게 하려면 전열 면적이거나 체류시간을 증가시키는 방법이 일반적으로 사용되지만 개질기 부피<sup>1)</sup> 증가 및 개질기의 차압이 증가할 수 있다.

개질기의 부피 증가는 열 손실 증가로 이어지며 차압 증가는 시스템 구동을 위한 BOP 소비 전력 증가로 이어져 시스템 효율을 낮추게 된다. 본 연구에서 개질기의 차압은 수 kPa 이하를 목표로 하였다.

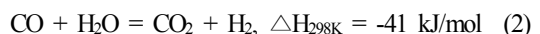
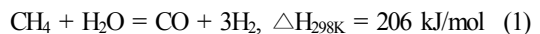
본 연구에서는 SOFC 시스템의 효율을 높이기 위해 개질기 내부의 반응물 유로와 열원 유로의 차압이 낮고 개질기로 공급하는 열량과 출구 열량의 차이로부터 정의된 열효율이 높은 열교환기형 개질기를 설계 및 제작하고자 하였다.

## 2. kW급 SOFC 시스템용 개질기 설계

### 2.1 개질기 특징

연료 공급 용이성으로 인하여 대부분 연료전지의 연료는 도시가스를 사용하고 있고 고정형 연료전지 시스템에서는 효율이 높은 수증기 개질을 주로 채택하고 있다<sup>2,4)</sup>. 도시가스 수증기 개질은 메탄을 주성분으로 하는 도시가스를 수증기와 반응시켜 수소를 얻는 것으로 주요 반응식은 다음과 같다.

개질 반응식



특히 반응식 (1)은 흡열 반응으로 반응을 유지하기 위하여 반응에너지를 촉매에 지속적으로 공급해 줘야 한다. 반응에 필요한 에너지와 공급하는 에너지 사이의 비율이 개질기 열효율에 해당된다.

반응식 (2)는 반응식 (1)의 생성물인 CO와 반응하여 수소가 생성되는 반응으로 반응식 (1)에 비하여 낮은 온도에서 일어난다. PEMFC에서는 수소만 연료로 사용하고 CO는 촉매독으로 작용하므로 반응식 (1)과 반응식 (2)를 통하여 전환율을 최대로 유지해야 하지만 SOFC는 CO가 연료로 사용 가능하므로 필요에 따라 반응식 (1)만으로 충분하다.

촉매 반응성을 높이기 위하여 촉매 입자크기를 줄이면 활성 면적이 증가하지만 개질기의 압력이 증가하므로 촉매는 2-10 mm의 펠렛형을 주로 사용한다. 펠렛형 촉매는 개질기의 촉매층에 충전되며 열교환면의 반대편에서 공급되는 고온의 배가스에 의하여 에너지를 공급받아 개질 반응이 진행된다.

개질 반응에 의하여 촉매의 온도가 낮아지므로 열원으로부터 멀어지는 방향으로 온도 구배가 발생하고 온도차에 의한 촉매의 반응성 및 에너지 효율이 변화하여 시스템 효율에 영향을 미치게 된다. 고온의 배가스는 개질 촉매에 반응열을 공급하고 개질기의 배가스 통로를 통하여 시스템 후단의 BOP에 에너지를 공급한다.

일반적인 개질기의 주 개발 방향은 소형화와 고효율화이다<sup>5,6)</sup>. 열교환 개질기의 기본 구조는 Fig. 1과 같은 구조이며 이중관의 내부에 열원으로 사용하는 배가스, 이중관의 사이에는 촉매를 충전한다. 이 구조는 촉매층의 단면적이 작아 열전달이 원활하지 않으며 촉매의 흡열 반응으로 인하여 길이 방향과 원주 방향으로 온도 구배가 발생한다. 촉매층의 온도 구배를 보상하기 위하여 반응열을 더 공급할 경우 열을 공급받는 쪽의 온도가 상승하여 촉매 수명에 영향을 미칠 수 있다.

## 2.2 고열효율 개질기 설계

개질기 촉매층에서 온도 구배를 감소하여 열효율

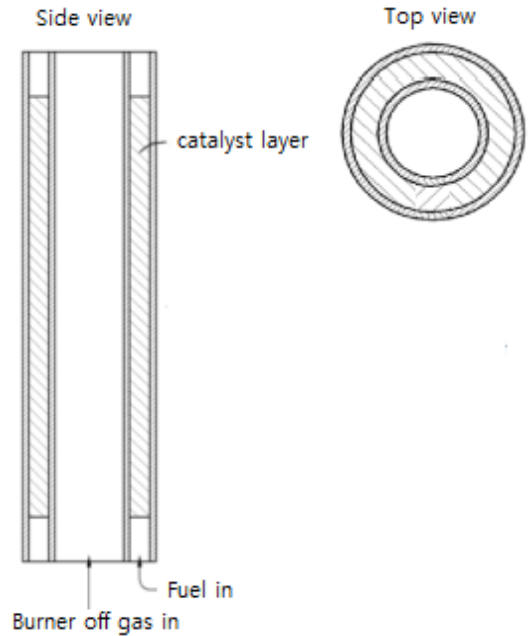


Fig. 1. Double tube structure of general pellet type catalytic reformer

을 높이기 위하여 촉매층 유로, 촉매층 배치, 열원 가스 유로를 동시에 설계하였다. 반응물 유로와 열원 유로는 나선형 구조로 하였고 최외곽에는 촉매 보호층과 열 회복층을 Fig. 2와 같이 배치하여 개질 반응을 위한 에너지 공급량을 최소화하고자 하였다.

설계한 열교환기형 개질기의 구조는 Fig. 2와 같이 2개의 원통이 결합된 구조를 이루며 내부 원통은 열원 가스 유로, 내부와 외부 원통 사이 공간은 반응부와 열원부가 교대로 층을 이루는 구조로 설계하였다.

반응부와 열원부는 1단씩 교차 배치되어 열원부의 에너지가 반응부의 촉매에 충분히 공급되도록 하였고 촉매층을 지나면서 온도가 낮아진 반응 가스의 온도를 상승시키기 위한 온도 회복 구간을 교차 배치하였다.

Fig. 2에서 반응물은 개질기 상부의 연료 유입관을 통하여 들어와 어둡게 표시된 개질반응부를 단계별로 통과하여 하단 측면의 개질가스 배출관을 통하여 배출 후 연료전지 스택으로 공급된다.

열원가스는 개질기 하단의 열원 유입관을 통하여 들어와 중심축 위치에 설치된 유로를 따라 개질기

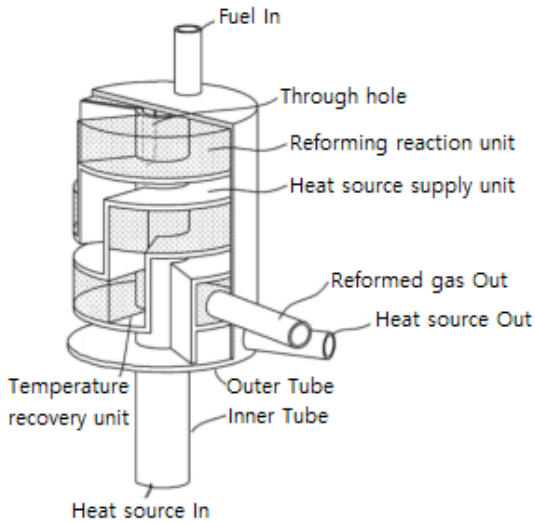


Fig. 2. Structure of reforming reactor

상단까지 올라온 후 흰색으로 표시된 열원공급부를 단계별로 따라 내려가 개질기 하단의 열원가스 배출관을 통하여 다음 BOP의 열원으로 공급된다. 열원가스는 버너에서 연료 연소에 의하여 발생한 700-1,000°C의 연소 배가스(burner off gas, BOG)이다.

개질 반응기 내부에서 개질 반응과 열교환이 동시에 이루어지므로 개질기 크기가 감소하고 그로 인하여 열손실도 감소하는 효과가 있다.

위의 설계안에 의하여 제작된 반응기를 Fig. 3에 나타내었다. Fig. 2와 같은 배치이며 반응기 왼쪽의 배관 3개는 촉매 충전을 위한 것이다. 개별 촉매층에 접근할 수 있기 때문에 시스템 정비시 촉매 교체 및 정비성도 용이하다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 개질기 전환을 평가

개질기 평가는 개질촉매의 반응성을 평가하고 그 결과를 바탕으로 개질 반응기를 설계하였다. 반응기는 버너와 일체형 모듈로 제작 후 개질-버너 핫박스 형태로 평가하였다.

개질촉매는 상용으로 사용하는 FCR-70 (3.2×3.2 mm



Fig. 3. Photo of reforming reactor

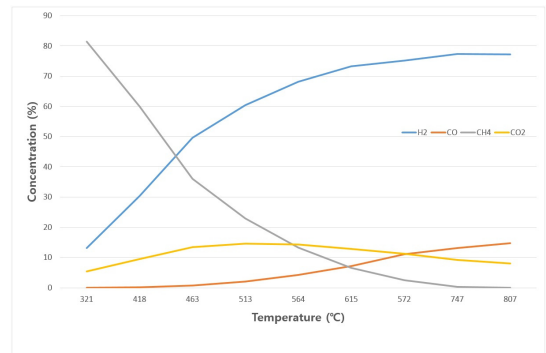


Fig. 4. Reformed gas composition by temperature

Tab:Clarient)이며 환원 후 사용하였다.

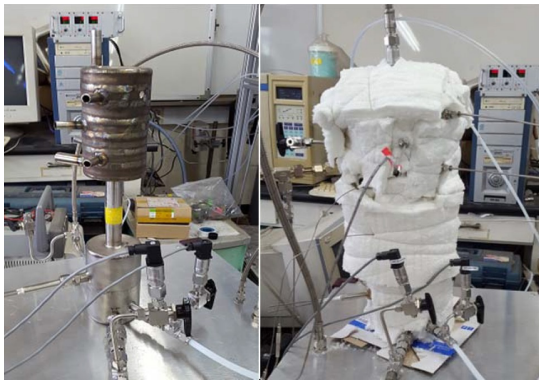
전기로서 270 mL의 촉매에 대하여 온도에 따른 촉매 활성을 측정하였다. 반응물은 메탄과 순수였으며 GHSV=3,000 hr<sup>-1</sup>, S/C ratio=3.0이었다.

운전 결과 700°C 이상에서 94% 이상의 전환율을 얻었으며 촉매층 온도 747°C에서 Fig. 4 및 Table 1과 같이 77.40 vol% H<sub>2</sub>, 13.17 vol% CO, 0.28 vol% CH<sub>4</sub>, 9.16 vol% CO<sub>2</sub>의 가스 조성을 확인하였다.

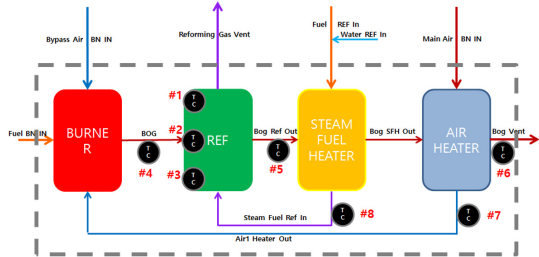


**Table 1.** Reformed gas composition by temperature

Temp.	H <sub>2</sub>	CO	CH <sub>4</sub>	CO <sub>2</sub>
381	13.14	0.02	81.41	5.43
418	30.39	0.19	59.93	9.50
463	49.61	0.77	36.12	13.50
513	60.42	2.01	22.98	14.59
564	68.18	4.17	13.31	14.34
615	73.34	7.19	6.56	12.91
672	75.15	11.17	2.50	11.19
747	77.40	13.17	0.28	9.16
807	77.16	14.81	0.02	8.01



**Fig. 5.** Reformer-burner module

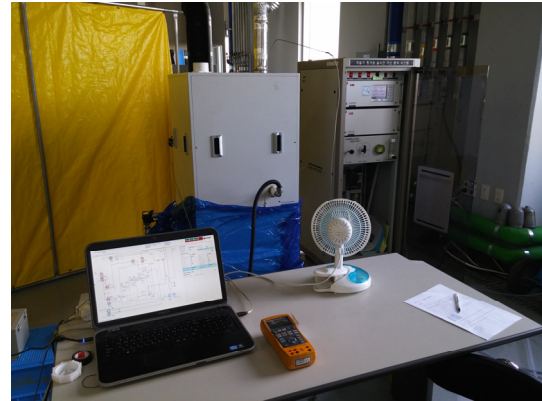


**Fig. 6.** Hot box structure for reformer test

가스 분석에는 가스분석기(ABB, Uras 26, Caldos 27)와 가스 크로마토그래피(Agilent, 7890A)를 사용하였다.

촉매 활성 테스트를 통하여 개질 반응기의 촉매 온도 및 반응조건을 고려하여 개질기 내부에 촉매를 분산 충전하였다. 반응기는 촉매 투입구를 통하여 촉매 교체가 가능하고 촉매층 온도를 측정하였다.

SOFC 시스템용 개질기의 열원은 버너의 연소가



**Fig. 7.** SOFC system and gas analyzer

스를 열원으로 사용하므로 개질기 평가를 위하여 개질기-버너 모듈을 제작하였다.

개질기-버너 모듈은 Fig. 5와 같이 제작하였으며 단품 실험 시에는 오른쪽과 같이 단열 후 운전하였다.

SOFC 시스템과 유사한 조건에 평가하기 위하여 개질기, 버너, 예열기를 포함하는 개질기 평가용 핫박스를 Fig. 6과 같이 구성하였다.

버너는 개질에 필요한 열에너지를 공급하기 위하여 메탄과 공기를 공급하였으며 개질기 촉매층 온도에 따라 버너 상태를 제어하였다. 촉매층 온도가 개질 반응이 가능한 온도에 도달하면 수증기와 메탄을 개질기로 공급하여 개질 반응을 진행하였고 개질 반응이 정상상태에 도달하면 개질기 생성물의 일부를 가스 분석기를 이용하여 조성을 분석하였다.

Fig. 7은 평가 중인 시스템과 가스분석기이다. “개질기-버너-연료 예열기-공기 예열기”로 구성된 핫박스를 제어하기 위하여 실제 시스템용 콜드박스를 이용하였다. 제어 변수는 실제 시스템과 유사하므로 일부 제어 사양 변경 후 운전하였다.

개질기 운전조건에 대하여 개질기 열효율은 아래 식 (3)과 같다.

$$\text{개질기 열효율 (\%)} = \frac{\text{개질기 사용 열량 (W)}}{\text{개질기 공급 열량 (W)}} \times 100 \quad (3)$$

개질에서 사용하는 열량은 개질반응에 필요한 열량과 개질기의 입-출구 가스의 열량 차이인 가스 예

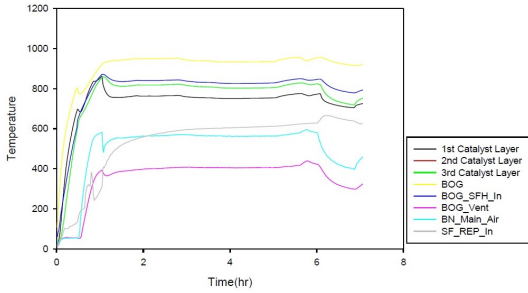


Fig. 8. Reformer-burner module

Table 2. Gas composition

Comp.	Ratio	Unit
H <sub>2</sub>	77.23	vol%
CO <sub>2</sub>	7.44	vol%
CH <sub>4</sub>	0.17	vol%
CO	15.16	vol%
Total	100.00	vol%

열 열량의 합과 같으며 식 (4)와 같다.

$$\text{개질기 사용 열량}(kW) = \text{개질 반응 열량}(kW) + \text{가스 예열 열량}(kW) \quad (4)$$

개질기 공급 열량은 열원인 버너의 배가스 입-출구 열량 차이로부터 구할 수 있다. 단, 배가스 조성 중 98% 이상이 공기이므로 단일 기체로 가정하여 식 (5)와 같이 공기 물성치만으로 열량을 계산하였다.

$$\begin{aligned} \text{개질기 공급 열량}(kW) &= \text{출구 온도 공기 비열}(kJ/kg \cdot K) \times \text{공기 유량}(kg/min) \times 1(\text{min}) - \text{입구 온도 공기 비열}(kJ/kg \cdot K) \times \text{공기 유량}(kg/min) \times 1(\text{min}) \end{aligned} \quad (5)$$

시스템의 정상상태에서 개질기 촉매층 온도를 700°C 이상으로 유지하여 상대적으로 낮은 온도에서 일어나는 수성가스 전이 반응의 영향을 최소화하였다.

개질기 평가를 위한 핫박스의 온도 분포와 개질가스의 조성을 Fig. 8과 Table 2에 나타내었다. 개질가스의 조성은 핫박스가 정상상태에 도달한 이후 분석하였다.

Table 3. Average temperature of the reformer fuel inlet-outlet

	Fuel in	Fuel out
Avg. temp.	610.0°C	759.2°C

개질기 전환율은 개질기 출구 가스를 습식 가스미터로 분석하고 개질기 입구 조성과 유량을 알고 있는 메탄을 기준으로 98.81%를 구하였다.

위의 결과로부터 개질 반응에 필요한 열량은 아래 식으로부터 318 W를 구하였다.

$$\begin{aligned} \text{개질 반응 열량}(kW) &= \text{반응열}(kJ/mol) \times \frac{\text{공급량}(L/min) \times 1(\text{min}) \Pi \times \text{전환율}}{22.4(L/min) \times 60(\text{sec})} \\ &= 206(kJ/mol) \times \frac{2.1(L/min) \times 1(\text{min}) \Pi \times 0.9881}{22.4(L/min) \times 60(\text{sec})} \\ &= 0.318 kW \end{aligned}$$

반응 가스를 개질기에 공급할 때 예열 열량은 개질기 출구 가스의 조성별 유량과 비열을 이용하여 구하였다. 개질기 출구 유량은 메탄의 유량과 전환율을 이용하여 구하며 개질기 입구와 출구 온도는 정상상태 구간의 평균 온도로 Table 3과 같다.

개질기로 공급되는 반응기체의 예열 열량은 아래 식으로 계산하였다.

$$\begin{aligned} n \text{ 가스 예열 열량}(kW) &= \text{개질기 출구 온도의 } n \text{ 비열}(KJ/Kg \cdot K) \times n \text{ 질량유량}(Kg/min) \times 1(\text{min}) - \text{개질기 입구 온도의 } n \text{ 비열}(KJ/Kg \cdot K) \times n \text{ 질량유량}(Kg/min) \times 1(\text{min}) \\ &= H_2O \text{ 예열 열량}(kW) + CH_4 \text{ 예열 열량}(kW) + H_2 \text{ 예열 열량}(kW) + CO \text{ 예열 열량}(kW) + CO_2 \text{ 예열 열량}(kW) \\ &= 0.097 kW \end{aligned}$$

개질기 공급 열량을 위의 식 (3)에 Table 2의 공기 유량과 Table 4의 온도를 이용하여 아래와 같이 계산

**Table 4.** Average temperature of the reformer BOG inlet-outlet

	BOG in	BOG out
Avg. Temp.	959.6°C	822.3°C

하였다.

개질기 공급 열량( $KW$ ) - 식 (3)

$$\begin{aligned}
 &= 1.173 (KJ/Kg \cdot K) \times 0.156 (Kg/min) \times 1 (min) \\
 &\quad \times 1205.95 (K) / 60 (sec) \\
 &\quad - 1.164 (KJ/Kg \cdot K) \times 0.156 (Kg/min) \times 1 (min) \\
 &\quad \times 1098.95 (K) / 60 (sec) \\
 &= 0.443 kW
 \end{aligned}$$

위의 결과를 개질기 열효율 식 (1)에 대입하여 아래와 같이 정리하면 개질기 열효율 93.7%, 개질기 열손실 28 W를 얻었다.

$$\begin{aligned}
 \text{개질기 열효율}(\%) &= \frac{\text{개질기 사용 열량}(KW)}{\text{개질기 공급 열량}(KW)} \times 100 \\
 &= \frac{318 W + 97 W}{443 W} \times 100 \\
 &= 93.7\%
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \text{개질기 열손실}(W) &= \text{개질기 공급 열량}(W) \\
 &\quad - \text{개질기 사용 열량}(W) \\
 &\quad - \text{개질기 배출 열량}(W) \\
 &= 443 W - 318 W - 97 W \\
 &= 28 W
 \end{aligned}$$

개질 반응에 필요한 에너지는 핫박스 내부의 버너 배가스로부터 공급받기 때문에 SOFC 시스템용 개질기의 열효율은 시스템 효율에 영향을 미치는 중요한 요인 중의 하나이다.

## 4. 결론

본 연구를 통하여 kW급 SOFC 시스템의 효율을 높이기 위한 주요 요인 중 하나로 열교환기형 개질기의 열효율을 최적화하고자 하였다. 반응부와 열원부가 반복 교차되는 구조로 개질기를 설계하였고 질

제 시스템과 유사한 핫박스를 설계 제작 후 운전 결과를 통하여 개질기 열효율을 평가하였다.

1) 연료가스와 열원가스가 번갈아 적층되는 열교환기형 구조의 개질기를 설계하였다.

2) 열교환기형 개질기의 연료가스 유로와 열원가스 유로의 차압을 각각 수 kPa 수준으로 설계하여 가스 공급을 위한 BOP 전력 소모를 감소시켰다. 이때 시스템에서 제어를 위한 전력 소모는 50 W 수준이었다.

3) 정상상태에서 개질기 입-출구 운전조건으로부터 열교환기형 개질기의 열효율 93.7%를 얻을 수 있었으며 이때 열손실은 28 W였다. 이로부터 시스템 운전을 위한 에너지 공급량을 낮춰 시스템 효율을 증가시킬 수 있었다.

## 후 기

본 연구는 산업통상자원부(MOTIE)와 에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제이다 (과제번호: 20163030031820).

## References

1. H. Ji, S. Lim, J. Bae, and Y. Yoo, "A study on operation characteristics of planar-type SOFC system integrated with fuel processor", Transactions of the Korean Society of Mechanical Engineers - B, Vol. 30, No. 8, 2006, pp. 731-740.
2. J. R. Rostrup-Nielsen, J. Sehested, and J. K. Nørskov, "Hydrogen and synthesis gas by steam and CO<sub>2</sub> reforming", Adv. Catal., Vol. 47, 2002, pp. 65-139.
3. K. H. Lee, H. T. Woo, S. M. Lee, Y. D. Lee, S. G. Kang, K. Y. Ahn, and S. S. Yu, "A case study of different configurations for the performance analysis of solid oxide fuel cells with external reformers", Transactions of the Korean Society of Mechanical Engineers - B, Vol. 36, No. 3, 2012, pp. 343-350.
4. K. Rashida, S. K. Dong, M. Mehran, and D. W. Lee, "Design and analysis of compact hotbox for solid oxide fuel cell based 1 kW-class power generation system", Applied Energy, Vol. 208, 2017, pp. 620-636.
5. U. H. Jung, K. Y. Koo, and W. L. Yoon, "Development of a compact fuel processor for building fuel cells", 2010, p. 224.
6. A. Heinzl, B. Vogel, and P. Hubner, "Reforming of natural gas-hydrogen generation for small scale stationary fuel cell systems", J. Power Sources, Vol. 105, 2002, pp. 202-207.