

<학술논문>

DOI <http://dx.doi.org/10.3795/KSME-B.2013.37.8.753>

ISSN 1226-4881

## 열전달 향상을 위한 새로운 MCFC 연료전지용 프리컨버터의 수치해석

손 창 현\*

\*경북대학교 기계공학부

### Numerical Analysis of New Proposals to Enhance Heat Transfer in MCFC'S Preconverter

Chang Hyun Sohn\*

\* School of Mechanical Engineering, Kyungpook Nat'l Univ.

(Received January 14, 2013 ; Revised April 29, 2013 ; Accepted July 3, 2013)

**Key Words:** CFD(전산유체역학), Preconverter(프리컨버터), Stream Reforming Reaction(수증기 개질 반응), Heat transfer(열전달), Fuel Conversion(연료전환율)

**초록:** 본 연구는 MCFC용 벽면가열 방식 프리컨버터의 낮은 열전도율 때문에 발생하는 벽면 고온 발생 문제를 해결하기 위한 두 가지 방안을 수치해석을 통해 연구하였다. 프리컨버터 내부에 열전도율이 높은 다공성판을 설치한 경우 벽면에서 중심부위로 열전달이 향상되어 수소 생성이 벽면부위에 국한되지 않고 촉매내부에 좀 더 균일하게 발생하는 것을 확인하였다. 그리고 촉매 내부에 일정한 두께의 빈 공간을 중심, 1/2 그리고 4/5 위치에 두고 해석하여 결과를 비교하였고, 1/2위치의 빈 공간이 다른 경우에 비해 연료전환이 보다 이상적인 경우에 근접하지만 열전도율이 높은 다공성판의 설치가 보다 효과적임을 확인하였다.

**Abstract:** In this study, two proposals for the wall heating preconverter of an MCFC are numerically studied to resolve hot temperature generation near the wall by the low thermal conductivity of the catalyst. The numerical results show that the inserted porous copper plates on the catalyst evidently improve heat transfer and realize more uniform reforming in the preconverter. The calculated results for the preconverter with a circumference empty space of catalyst located at center, 1/2 and 4/5 from center line are compared. The circumference empty space located at 1/2 position shows better results than other cases, but the positive effect on the uniform reforming process is less than in the case of inserted copper porous plates on the catalyst.

### 1. 서론

연료전지는 수소와 공기 중의 산소를 이용하여 전기에너지로 변환시키는 에너지 변환기구이며, 효율이 높고 배출가스가 순수한 물이기 때문에 오염물질을 발생시키지 않는다는 장점이 있는 신재생에너지 장치이다.<sup>(1)</sup> 하지만 연료인 수소는 지구상에서 가장 풍부한 원소이지만 자연 상태에서 직접구하기 힘들므로 이미 인프라를 갖춘 화석연료를 개질하여 수소를 생산하는 탄화수소 연료개질법이 가장 실용적이다.<sup>(2-4)</sup>

개발하고자 하는 MCFC (Molten Carbonate Fuel Cell) 용 프리컨버터는 연료전지에서 발생된 폐열로 수소를 추가 생산하는 일종의 수증기 개질기

이며 부하의 급격한 변동에 따라 프리컨버터의 연료전환율을 높이기 위해 벽면가열 방식으로 추가적인 열량을 공급가능하게 설계되어져 있다.<sup>(5,6)</sup>

선행 연구에서 프리컨버터의 연료전환 해석 결과를 실험결과와의 비교를 통해 검증하였고, 요구되는 연료전환율을 만족하기위해 추가적인 열량공급이 필요하며, 탈산화촉매 공간 제거를 통해 성능을 유지하면서 프리컨버터의 소형화가 가능함을 보였다.<sup>(5)</sup> 탈산화촉매 제거로 인해 발생하는 와류유동은 유동균일화 장치를 설치하여 억제할 수 있었고, 촉매의 낮은 열전도도로 인해 가열벽면 부근에서 고온이 발생하여 화학반응이 벽면에만 집중되어 촉매의 소모가 불균일해질 수 있는 현상을 확인할 수 있었다.<sup>(6)</sup>

본 연구에서는 벽면 가열 프리컨버터에서 촉매의 낮은 열전도율로 생성되는 벽면 고온 발생을

† Corresponding Author, [chsohn@knu.ac.kr](mailto:chsohn@knu.ac.kr)

Table 1 Boundary conditions

Reformer inlet	$x=0$	$U=U_{in}$	-	$T=T_{in}$	$C=C_{in}$
Reformer outlet	$x=L$	-	$p=p_{atm}$	$\frac{\partial T}{\partial x}=0$	$\frac{\partial C}{\partial x}=0$
Axisymmetric condition	$r=0$	$\frac{\partial U}{\partial r}=0$	-	$\frac{\partial T}{\partial r}=0$	$\frac{\partial C}{\partial r}=0$

억제하고자 새로이 제안한 MCFC용 프리컨버터들을 열유동해석을 통해 그 유효성을 확인하고자 한다. 해석은 상용프로그램인 CFD-ACE<sup>(7)</sup>를 사용하였으며, 촉매내부에서 일어나는 주요 개질 반응은 사용자 부프로그램 (User Subroutine)을 이용하였다.<sup>(5,6)</sup>

## 2. 수치 해석

### 2.1 지배방정식

지배방정식은 비압축성 질량보존방정식, 운동량보존방정식, 에너지보존방정식 및 화학종보존식이 사용되며, 다공 물질로 가정한 촉매에 대한 해석은 식 (1)을 사용하였다. 식 (1)에서  $\epsilon$ 은 촉매의 다공도,  $\kappa$ 는 촉매의 투과율이며, 프리컨버터의 계산에서는  $\epsilon=0.3$ ,  $\kappa=4.5 \times 10^{-11} \text{ m}^2$ 을 사용하였다. 프리컨버터의 촉매층 격자는 Fig. 1과 같으며, 반경은 약 0.25m이며, 길이는 1.56m이다. 이론적인 계산과 이상적인 가열인 경우 10%의 연료전환율이 되기 위해선 4.5kW의 추가 열량이 필요한 것으로 계산되었으며<sup>(4)</sup> 외부 벽면을 통해 열량을 공급하는 방식으로 설계되어 있다. 격자는 형상변화가 심한 입구와 출구영역에 Fig. 2와 같은 삼각형 격자를 사용하고 나머지는 사각형의 정렬격자를 사용한 혼합형 격자(hybrid mesh)을 적용하였고, 격자수는 형상에 따라 28,000~36,000 정도를 사용하였다. 풍상차분법(Upwind Scheme)을 적용하였고, 수렴조건은  $1 \times 10^{-5}$ 이하로 설정하였다. Fig. 2에서 입구 삼각형 격자 이후 유동 균일화 장치가 설치되어 있으며,<sup>(6)</sup> 프리컨버터의 벽면 철판 두께는 4mm이고 Steel\_AISI\_2020의 열전도율 48W/m·K를 사용하였다. 유동은 촉매인 다공성 매질을 지나기 때문에 유입구 영역의 난류 유동 성분도 프리컨버터의 본체내부에서는 층류 유동화 될 것으로 판단하여 층류유동으로 해석하였고, 3차원 해석과 촉매층 해석 결과를 비교하였다.

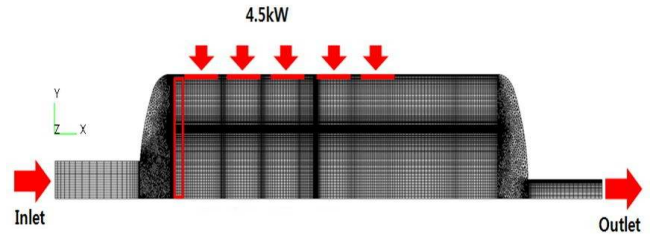


Fig. 1 The geometry of the preconverter

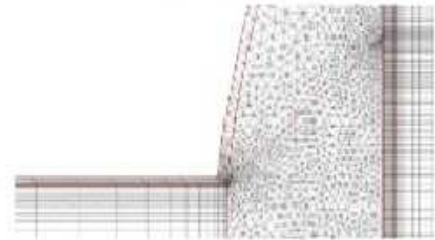


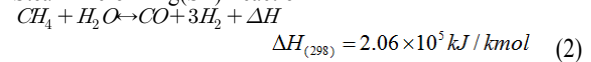
Fig. 2 Hybrid grid system near inlet

### 2.2 화학반응모델

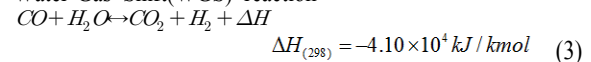
다공성 매질에 대한 유효열전도 계수는 Gurau 등<sup>(8)</sup>의 모델인 식 (5)을 적용하였다. 식 (5)에서  $k_s$ 와  $k_f$ 는 고체와 유체의 열전도계수이며, 프리컨버터의 화학반응은 Ni촉매표면의 화학반응이 전체 반응속도를 결정한다는 가정하에 Langmuir-Hinshelwood 모델을 이용하여 화학반응률을 계산하였다. 프리컨버터 내의 화학반응은 Xu & Froment<sup>(9)</sup>가 제시한 식 (2), (3), (4)의 세 가지 화학반응을 사용하였고 자세한 내용은 참고 문헌<sup>(6)</sup>에 나타나 있다.

$$\frac{\partial}{\partial t}(\epsilon \rho U) + \nabla \cdot (\epsilon \rho U^2) = -\epsilon \nabla p + \nabla \cdot (\epsilon \tau) + \epsilon B - \frac{\epsilon^2 \mu}{\kappa} U - \frac{\epsilon^2 C_F}{\sqrt{\kappa}} |U| U \quad (1)$$

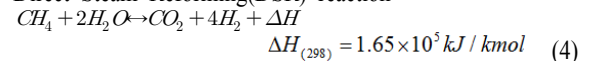
#### Steam Reforming(SR) reaction



#### Water-Gas Shift(WGS) reaction



#### Direct Steam Reforming(DSR) reaction



$$k = -2k_s + \frac{1}{\frac{\epsilon}{2k_s + k_f} + \frac{1-\epsilon}{3k_s}} \quad (5)$$

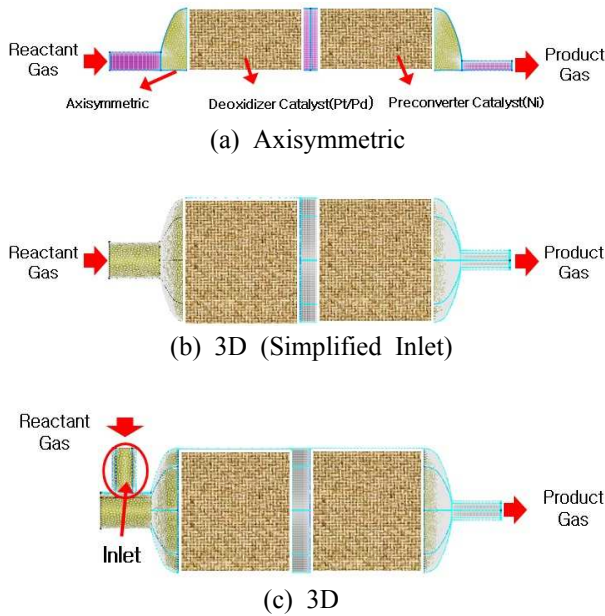


Fig. 3 Geometry of pre-converter for each cases

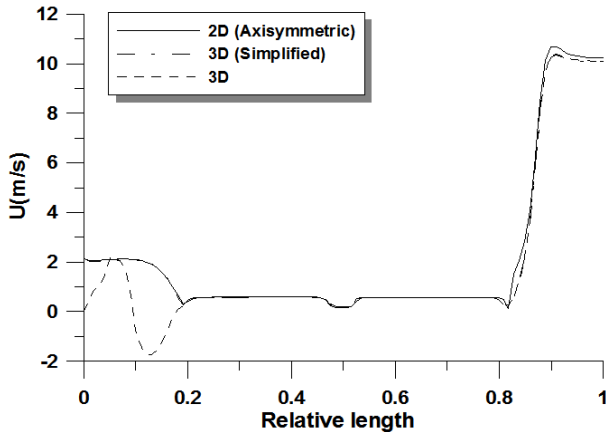


Fig. 4 Axial velocity along the center line

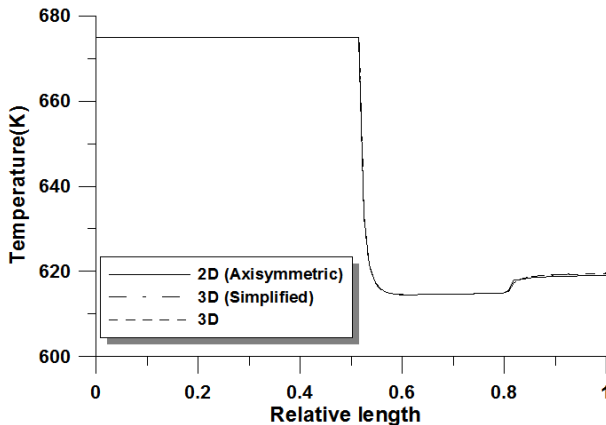


Fig. 5 Temperature along the center line

입구조건은 질량유량조건을 만족하는 일정속도와 675K의 온도 및 각 공급물의 농도는 CH<sub>4</sub> (0.3154), H<sub>2</sub>O (0.6637), CO<sub>2</sub> (0.0037), N<sub>2</sub> (0.0037)인 실험조건을 적용하였다. 해석을 위한 경계조건은 Table 1에 나타내었다.

### 3. 수치 해석 결과

#### 3.1 축대칭 및 3차원 프리컨버터 해석

Fig. 3은 프리컨버터 해석을 하기 위한 축대칭 형상과 연료공급 유입구를 간략화한 3차원 형상 및 3차원 형상을 보여주고 있다. 벽면은 단열조건을 적용하였고 입구조건은 질량유량 조건으로부터 입구 유입속도(2.14m/s)와 675K의 온도 및 각 공급물의 농도를 주었다. Fig. 3 (c)의 경우 유입구가 중심선에 수직방향으로 부착되어 있고 동일한 입구 질량유량조건을 주기위해 8m/s의 유속을 입구조건으로 주어 비교하였다. Fig. 4는 중심선을 따라 축방향 유속을 나타낸 그래프이다. 축대칭 해석이나 유입구를 간략화한 3차원 해석의 유속 결과는 일치하였으며, 중심선에 수직방향에서 공급물이 공급되는 3차원형상 해석의 경우, 입구영역인 상대길이 0~0.2까지 축방향 유속의 변화가 심한 것을 볼 수 있다. 그러나 3가지 형상모델 모두 축대칭영역에서 일정한 유속으로 유지되다가 출구 쪽에서의 면적이 좁아지면서 유속이 빨라진다. Fig. 5은 중심선을 따른 온도변화를 나타내고 있다. 개질화학반응이 일어나는 촉매 입구에서 흡열반응이 활발히 일어나서 온도가 급격하게 하락하였다가 출구영역의 정체영역에서 조금 상승하는 것을 볼 수 있다. 3가지 모델 모두 출구에서의 온도 값이 유속과 마찬가지로 비슷한 결과가 나타나는 것을 알 수 있다. Fig. 6은 출구에서의 각 형상에 따른 연료전환율(반응으로 소모된 연료/공급된 연료)을 나타낸 그림으로 축대

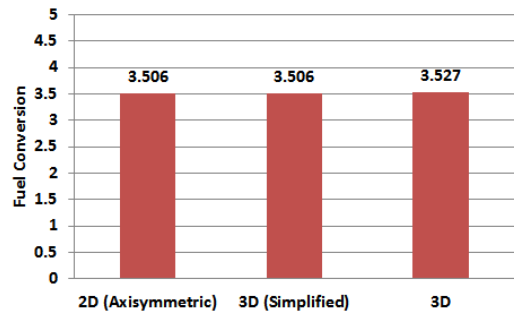


Fig. 6 Fuel conversion for different geometry

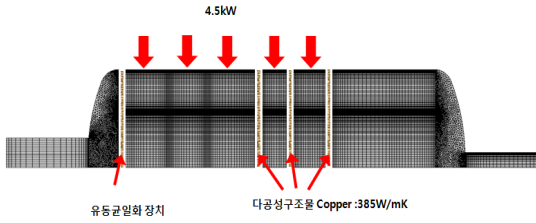


Fig. 7 Preconverter with copper plate

칭해석과 완전 3차원 형상의 결과차이는 최대 0.6%내에 일치하는 것을 알 수 있다. 이러한 결과를 바탕으로 축대칭 해석만으로도 충분한 결과를 얻을 수 있다고 판단하였다.

3.2 열전도율이 높은 다공성판 적용해석

Ni 촉매 내부에 이상적으로 균일하게 4.5kW를 공급할 경우 이론적인 수소 연료전환율은 10%가 되며 이를 수치해석을 통해서도 확인하였다.<sup>(6)</sup> 그러나 개발하고자하는 프리컨버터는 벽면 열량공급 방식을 적용하고 있으며 촉매의 낮은 열전도율로 인해 벽면부근에서 고온이 발생하고 이로 인해 과도한 화학반응이 발생하여 연료전환율이 예측 값보다 높게 나타났다.<sup>(6)</sup> 촉매의 일부영역에서만 화학반응이 생겨 불균일하게 수소가 생성되는 것은 촉매 소모에 따른 유지 및 보수에 심각한 나쁜 영향을 미칠 수 있기 때문에 촉매 내부 전체에서 화학반응이 일어나게 프리컨버터를 설계하는 것이 중요하다.

Fig. 7은 촉매내부에 구리와 같은 열전도율이 높은 다공성판을 설치하여 프리컨버터 가열벽면에서 중심으로의 열전달을 촉진시키고자 제안한 형상이다. 다공성 구리판은 촉매 입구와 85mm, 100mm 간격으로 3군데에 설치하였다. Fig. 8은 열전도율이 높은 다공성판의 설치유무에 따른 온도분포를 나타낸 그림이다. 다공성판을 설치했을 때 다공성판을 따라 프리컨버터 내부로 열이 전달되는 것을 알 수 있다. Fig. 9는 개질반응을 통해 생성된 수소 분포를 나타낸 그림으로 다공성 열전도판을 설치한 경우가(Fig. 9(b)) 촉매 영역 전체에서 보다 균일하게 수소가 생성되는 것을 확인할 수 있다.

Fig. 10은 식 (2)의 스팀 개질 반응에 의해 생성된 CO분포를 보여 주고 있다. 수소 분포와 마찬가지로 촉매영역 전체에 보다 균일하게 반응하고 있음을 알 수 있다.

Fig. 11은 다공성 구리판을 설치 유무에 따른 수

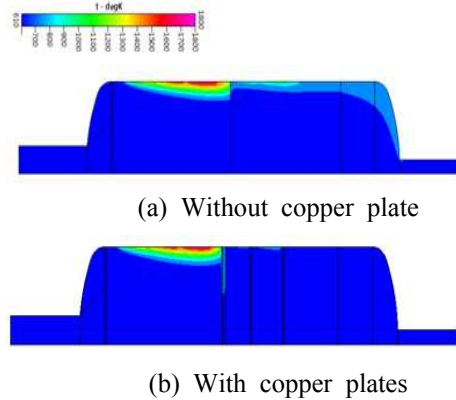


Fig. 8 Temperature contour with and without copper plate

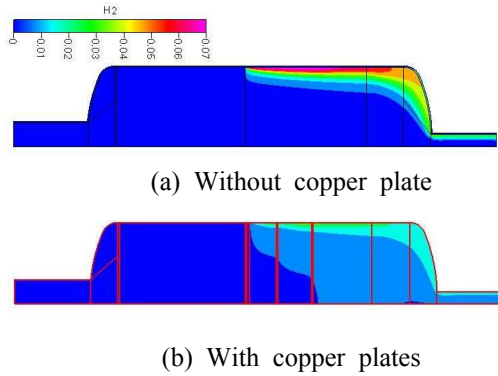


Fig. 9 H<sub>2</sub> contour with and without copper plate

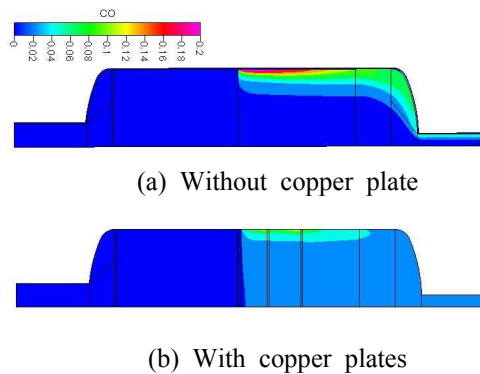


Fig. 10 CO contour with and without copper plate

소 연료전환율을 비교한 것으로 구리판을 설치하지 않은 경우의 연료전환율은 14.34%로 이상적인 균일 가열 조건에서의 연료전환율 10%보다 매우 높게 계산되었다. 이에 비해 다공성 구리판을 설치한 경우의 수소연료전환율은 10.85%로 이상적인 촉매 내부 균일 열량공급 조건에 근접한 화학반응이 일어나므로 고열전도율 다공판의 설치 효과를 확인할 수 있다.

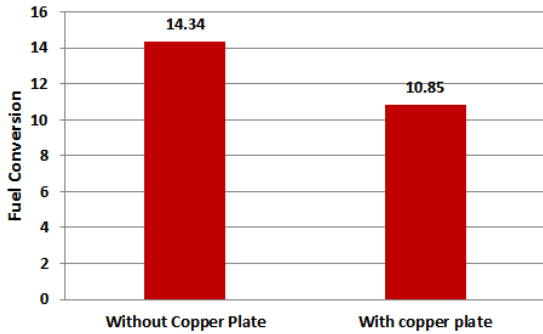
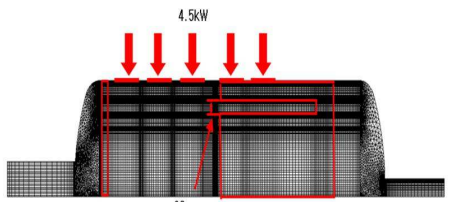
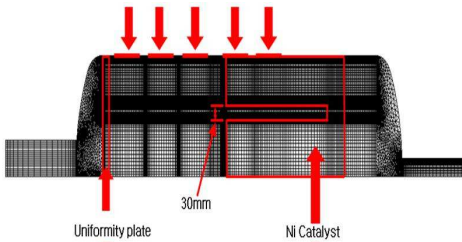


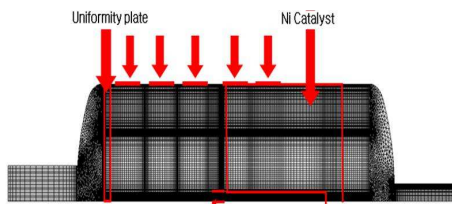
Fig. 11 Fuel conversion with and without copper plate



(a) Hole at 4/5



(b) Hole at 1/2

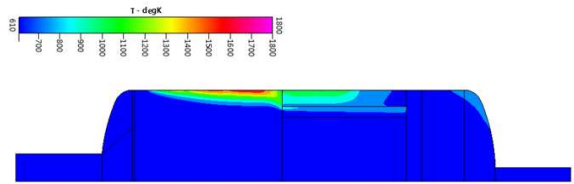


(c) Hole at center

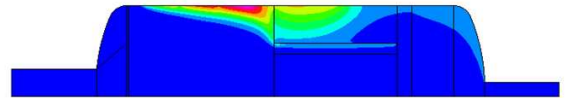
Fig. 12 Preconverter grid with circumference empty hole at 4/5, 1/2 and center location

3.3 촉매영역에 빈 공간이 있는 경우 해석  
 촉매영역내부에 Fig. 12와 같은 원주 둘레방향으로 빈 공간을 만들면 유동저항이 작은 빈 공간으로의 유량이 증가 되고 이로 인해 촉매 중심부로 보다 균일한 화학반응을 유도할 수 있을 것을 기대하고 해석을 시도하였다.

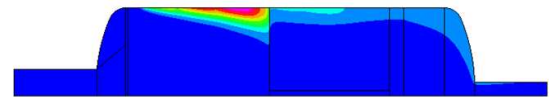
Fig. 12는 프리컨버터의 중심선을 기준으로 촉매의 중심선, 1/2지점, 4/5지점에 원주 방향으로 폭 30mm의 빈 공간을 만들고 연료가 개질반응



(a) Hole at 4/5

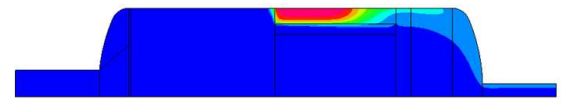
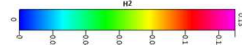


(b) Hole at 1/2

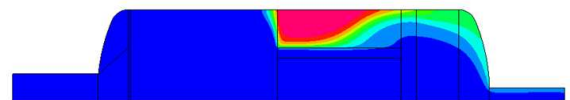


(c) Hole at center

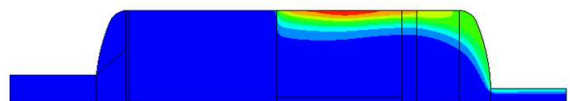
Fig. 13 Temperature contour with circumference empty hole at 4/5, 1/2 and center location



(a) Hole at 4/5



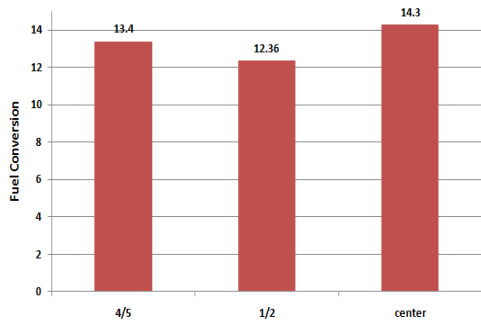
(b) Hole at 1/2



(c) Hole at center

Fig. 14 H<sub>2</sub> contour with hole at 4/5, 1/2 and center position

없이 바로 출구로 빠져나가는 것을 방지하기 위해 350mm깊이 까지만 빈 공간을 생성한 격자를 보여주고 있다. Fig. 13은 빈 공간의 위치 변화에 따른 온도분포를 나타내고 있으며 다른 위치 보다 1/2위치에 빈 공간이 있을 때 벽면으로부터 내부로 열전달이 보다 향상되는 것은 알 수 있다. Fig. 14은 생성된 수소 분포를 보여주고 있으며, Fig. 15는 연료전환율 역시 1/2 위치에 빈 공간이 있을 때 다른 경우보다 이론적인 연료전환



**Fig.15** Fuel conversion with hole at 4/5, 1/2 and center position

율에 가까움을 알 수 있으나 열전도율이 높은 다공판을 설치한 결과보다는 못함을 알 수 있다.

#### 4. 결 론

본 연구는 MCFC용 벽면가열 방식 프리컨버터의 벽면에 고온이 발생하는 문제를 해결하고 촉매 내부 열전달 향상을 위해 수치해석을 수행하였다. 축대칭 해석과 3차원 해석 결과 비교를 통하여 축대칭 해석으로도 정확한 결과를 얻을 수 있음을 확인하였다. 프리컨버터 내부에 열전도율이 높은 다공성판을 설치한 경우 벽면으로부터 중심으로의 열전달이 향상되어 수소 생성이 벽면 부위에 국한되지 않고 내부에 고르게 발생하는 것을 확인하였다. 그리고 촉매 내부에 원주 방향의 빈 공간을 촉매의 중심, 1/2지점, 4/5지점에 두고 해석하여 결과를 비교하였고, 1/2지점이 다른 경우에 비해 연료전환율이 이상적인 경우에 근접하지만 열전도율이 높은 다공성판의 설치가 보다 효과적임을 확인할 수 있었다.

#### 후 기

이 논문은 2012학년도 경북대학교 학술연구비에 의하여 연구되었음.

#### 참고문헌

- (1) O'ayre, R., Cha, S-W., Colella, W. and Prinz, F.B., 2006, "Fuel Cell Fundamentals," John Wiley & Sons, pp. 292~306.
- (2) Larminie, J. and Dicks, A., 2003, "Fuel Cell System Explained, Second Edition," John Wiley & Sons, pp. 229~279.
- (3) Park, J. G., Lee, S. K., Lim, S. W. and Bae, J. M., 2008, "Numerical Study on Correlation Between Operating Parameters and Reforming Efficiency for a Methane Autothermal Reformer," *Trans. Korean Soc. Mech. Eng. B*, Vol. 32, No.8, pp.636~644.
- (4) Park, J. G., Lee, S. K., Lim, S. W. and Bae, J. M., 2009, "Numerical Study on Operating 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.
- (5) Byun, D. H. and Sohn, C. H., 2011, "Numerical Study of Steam Reformer and Preconverter for MCFC," *KSCFE*, Vol.16, No.1, pp. 42~47.
- (6) Byun, D. H. and Sohn, C. H., 2012, "Numerical Analysis of Heat Transfer and Fuel Conversion for MCFC Proconverter," *Trans. Korean Soc. Mech. Eng. B*, Vol. 36, No. 4, pp. 425~430.
- (7) 2009, "CFD-ACE+ V2009.2 User Manual," ESI CFD Inc.
- (8) Gurau, V., Liu, H. and Kakac, S., 1998, "Two-Dimensional Model for Proton Exchange Membrane Fuel Cells." *AiChE Journal*; Vol. 44, No. 11, pp. 2410~2422.
- (9) Xu, J. and Froment, G.F., 1989, "Methane Steam Reforming, Methanation and Water-Gas Shift I. Intrinsic Kinetics," *J. of AiChE*, Vol.35, No.1, pp. 88~96.