

## 전산유체역학을 이용한 Fischer-Tropsch 마이크로채널 반응기의 채널 구조 영향 분석

나종걸 · 정익환 · Krishnadas S. Kshetrimayum · 박성호 · 박찬샘 · 한종훈<sup>†</sup>

서울대학교 화학생물공학부  
151-744 서울시 관악구 관악로 1  
(2014년 4월 1일 접수, 2014년 5월 12일 수정본 접수, 2014년 5월 14일 채택)

## Computational Fluid Dynamics Study of Channel Geometric Effect for Fischer-Tropsch Microchannel Reactor

Jonggeol Na, Ikhwon Jung, Krishnadas S. Kshetrimayum, Seongho Park, Chansaem Park and Chonghun Han<sup>†</sup>

*School of chemical and biological engineering, 1 Gwanak-ro, Gwanak-gu, Seoul 151-744, Korea*  
(Received 1 April 2014; Received in revised form 12 May 2014; accepted 14 May 2014)

### 요 약

해양 중소규모 가스전의 경제성에 대한 화두가 던져진 이후 전통 석유의 가격변동과 세계적인 환경규약 등에 맞물려 석유화학관련 산업계에서는 이를 효과적으로 대처하고 천연가스를 활용할 수 있는 공정을 개발하고자 하였다. 이에 Fischer-Tropsch 반응을 기반으로 하는 해상 GTL 공정(offshore gas-to-liquid process)이 제안되었고 부유시스템 platform으로 공정을 적용시키고자 마이크로채널 반응기가 떠오르고 있다. 본 논문에서는 단일 마이크로채널 반응기를 Fischer-Tropsch 반응을 기반으로 하여 Matlab과 ASPEN Hysys를 연동하여 모사하고 이로 얻어진 반응열을 도입해 상용 전산유체역학(computational fluid dynamics, CFD) 소프트웨어인 ANSYS fluent로 멀티 마이크로채널 반응기 모델을 제작하였다. 그리고 4가지의 설계변수인 냉각채널 넓이, 높이, 냉각채널과 반응채널의 간격, 냉각채널 간의 간격을 설정하고 이들의 변화에 따른 열유동을 3가지의 변수인 열유속, 냉각 및 반응채널의 최대온도의 변화를 시각화하여 그 경향성을 확인하였다. 경향성 분석 결과, 냉각채널의 넓이와 높이는 짧을수록 총 열유속이 높아졌으며 최대온도 역시 높아졌으나 냉각채널과 반응채널의 간격은 열유동에 거의 영향을 미치지 못하였다. 냉각채널 간의 간격은 짧을수록 총 열유속이 높아졌으며 최대온도는 낮아졌다. 따라서 적절한 냉각채널의 넓이와 높이를 제안하고 짧은 간격의 냉각채널 구조를 도입하여 반응채널의 열량을 충분히 제거할 수 있는 반응기설계에 대한 휴리스틱을 제안할 수 있었다. 이처럼 멀티채널 반응기의 모델을 설계하고 이로부터 적절한 변수를 선택해 그 경향성을 확인할 수 있는 방법을 통해 설계 단계에서부터 적절한 반응기 구조에 대한 제안을 하는데 도움을 줄 것이다.

**Abstract** – Driven by both environmental and economic reasons, the development of small to medium scale GTL(gas-to-liquid) process for offshore applications and for utilizing other stranded or associated gas has recently been studied increasingly. Microchannel GTL reactors have been preferred over the conventional GTL reactors for such applications, due to its compactness, and additional advantages of small heat and mass transfer distance desired for high heat transfer performance and reactor conversion. In this work, multi-microchannel reactor was simulated by using commercial CFD code, ANSYS FLUENT, to study the geometric effect of the microchannels on the heat transfer phenomena. A heat generation curve was first calculated by modeling a Fischer-Tropsch reaction in a single-microchannel reactor model using Matlab-ASPEN integration platform. The calculated heat generation curve was implemented to the CFD model. Four design variables based on the microchannel geometry namely coolant channel width, coolant channel height, coolant channel to process channel distance, and coolant channel to coolant channel distance, were selected for calculating three dependent variables namely, heat flux, maximum temperature of coolant channel, and maximum temperature of process channel. The simulation results were visualized to understand the effects of the design variables on the dependent variables. Heat flux and maximum temperature of cooling channel and process channel were found to be increasing when coolant channel width and height were decreased. Coolant channel to process channel distance was found to have no

<sup>†</sup>To whom correspondence should be addressed.

E-mail: chhan@snu.ac.kr

\*이 논문은 서울대학교 윤인섭 교수님의 정년을 기념하여 투고되었습니다.

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

effect on the heat transfer phenomena. Finally, total heat flux was found to be increasing and maximum coolant channel temperature to be decreasing when coolant channel to coolant channel distance was decreased. Using the qualitative trend revealed from the present study, an appropriate process channel and coolant channel geometry along with the distance between the adjacent channels can be recommended for a microchannel reactor that meet a desired reactor performance on heat transfer phenomena and hence reactor conversion of a Fischer-Tropsch microchannel reactor.

Key words: GTL, Fischer Tropsch, Microchannel, CFD, Simulation, Reactor

## 1. 서 론

최근 해상 중소규모 비경제성 가스전(stranded gas field)이나 수반 가스(associated gas)의 개발로 인하여, 해상 GTL 공정(offshore Gas-to-Liquid Process)의 연구가 활발히 이루어지고 있다. 0.1~5 TCF (trillion cubic feet) 정도의 천연가스를 매장하고 있는 중소규모 가스전의 규모는 전 세계 가스전수의 약 40%를 차지하고 있음에도 불구하고 기존의 LNG나 상용 GTL 공정을 통해서 경제성을 낼 수 없었기 때문에 상업화가 되지 못했었다[1]. 하지만 원유가격이 상승하고 환경오염 등의 문제가 대두되며 환경 보전과 에너지자원 확보를 실현하기 위해 수반가스 및 해상 중소규모 가스전 개발에 박차를 가하고 있다.

상용 GTL 공정은 일반적으로 순환유동층반응기(circulating fluidized bed reactor), 유동층반응기(fluidized bed reactor) 또는 슬러리반응기(slurry bubble column reactor) 등으로 운전된다[2]. 하지만, 이러한 반응기들은 해상의 부유 시스템(offshore floating system)에서 운전되기에는 수직방향으로 너무 높고 부피가 크며 질량이 상당히 무거워 기계적인 안정성에 문제가 생겨 사용되기 힘들다. 더불어, 상용 GTL 공정은 대형가스전에 적합하게 설계되었기 때문에 중소규모가스전에 사용될 경우 경제성이 떨어지게 된다. 이에 작은 부피로도 충분한 반응성능과 뛰어난 열 및 물질전달을 할 수 있는 마이크로채널 반응기(microchannel reactor)가 그 대안으로 떠오르고 있다[3].

마이크로채널 반응기는 물질전달이 빠르고 열 전달 효율이 좋기 때문에 사용 반응기 부피보다 10~1000배 작은 부피로도 높은 전환율을 보여준다[4]. 특히 GTL 공정 중 높은 반응열이 발생하는 Fischer-Tropsch 반응기의 경우, 마이크로채널 반응기의 높은 열 전달 효율을 이용하여 안정된 운전조건을 만족시킬 수 있다. 더불어 반응기를 모듈화를 시킬 수 있기 때문에 공정 및 공간활용도를 높일 수 있다[5]. 따라서 FPSO(floating production storage and offloading) 같은 특수 선박의 상부 설비(topside)에 적용시키기 적합하다.

하지만, 마이크로채널 반응기를 설계하는 방법은 아직도 많은 부분에서 한정된 조건에서 단순한 실험을 통한 결과와 일반적인 공학적인 직관에 의존하는 경우가 많으며 모델링과 시뮬레이션을 통한 광범위한 경향성 분석과 같은 연구는 아직 미비하다. 선두 마이크로채널 반응기업인 미국의 Velocys<sup>®</sup>는 pacific northwest national laboratory의 Wang 교수를 중심으로 Oxford Catalyst에서 개발한 Co-based catalyst의 kinetics 분석과 수율 향상을 위한 패킹 및 코팅 연구를 진행하고 있다[6]. 여기서 얻어진 데이터를 바탕으로 다양한 크기의 반응기를 설계하고 실험적인 결과를 얻어 반영하고 있는 실정이다. 반면, CFD를 기반으로 해석하려는 시도도 있는데 Arzamendi et al.는 3차원 CFD 모델을 적용시켜서 냉각채널과 반응채널을 십자 흐름(cross flow)로 보낸 상황에서 유동현상을 해석하고 정해진 범위 내에서 열 교환 능력과 냉매의 유속을 변화시키며 설계정보를 얻고

자 하였다[7]. Kandlikar and Upadhye는 Fin spacing과 채널의 개수에 따라서 압력강하와 냉매의 양에 대해서 마이크로채널 구조의 최적화를 하는 연구를 진행하였으나 반응이 없는 단순한 열교환기에 대한 것이다[8]. An et al.는 이차원에서 냉각채널 구조가 온도 분포에 어떤 영향을 미치는지 확인하고자 하였다. parallel, pin-hole, wavy 등의 다양한 채널 구조에서 Fischer-Tropsch 촉매 반응을 기반으로 한 반응 속도식을 통해 각각의 유동을 해석하고 메탄의 선택도(selectivity)와 반응속도를 분석하여 연관성을 밝혔다[9]. 이 밖의 연구결과 역시 실험적으로 반응기 디자인과 촉매패킹 방법 등을 바꿔가며 전환율(conversion)과 메탄 선택도에 대해서 분석하고 있으며 [10,11], 소수의 연구실에서 CFD를 이용하여 반응기 모델링을 하고 있는 실정이다[12-17].

특히 Fischer Tropsch 반응은 온도의존성이 매우 높기 때문에 열량을 적절하게 제거하여 온도변화를 최소화 하여 전환율을 높이고 메탄 선택도를 낮춰서 양질의 합성원유를 생산하고자 하는 연구가 진행되었다[18]. 온도제어가 적절하게 되지 않을 경우 hot spot이 발생하여 다른 부수반응들이 활성화되어 C<sub>5+</sub> 선택도가 낮아지게 때문이다. 따라서 마이크로채널 반응기의 핵심 연구분야는 1) 온도 제어를 통해 등온반응 환경을 조성하고 2) 이를 만족시키기 위한 반응기의 구조가 열유속(heat flux) 및 온도 분포에 어떤 영향을 미치는 지에 대한 현상 분석이다.

본 연구에서는 마이크로채널 반응기의 구조가 열유동현상에 어떤 영향을 미치는지에 대해서 CFD를 기반으로 한 해석을 통해 분석하고자 하였다. 반응속도식을 도입하여 반응열을 수치적으로 구하고 이를 고정시킨 반응기에 대해서 냉각채널의 구조를 너비(C<sub>W</sub>), 높이(C<sub>H</sub>), 냉각채널-냉각채널 간격(CC<sub>D</sub>) 그리고 냉각채널-반응채널 간격(CP<sub>D</sub>) 총 4개의 변수를 변화시키며 냉각채널 벽면의 열유속과 냉각채널과 반응채널의 최대온도(T<sub>max</sub>)의 경향성을 각각 분석하였다. 반응열 곡선을 얻기 위한 대상 모델은 Knochen et al.의 CoRe/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 촉매를 이용한 밀리채널 고정층 반응기로 모사하였으며 Matlab과 Aspen HYSYS를 연동하여 해석하였다[19]. CFD 모델은 3차원 마이크로채널을 3개의 냉각채널층과 2개의 반응채널층으로 구성하고 대칭평면을 활용하여 해석하였으며, ANSYS Fluent를 이용하였다. 이를 바탕으로 초기 반응기 설계 시 고려해야 할 경향성 및 휴리스틱을 제안하였다.

## 2. 해석모델 구조

본 연구에서는 3차원 FT 마이크로채널 반응기의 구조효과에 따른 온도 및 열 유속의 경향성을 해석하기 위하여 Fig. 1과 같이 크게 3가지의 순차적 방법론(sequential methodology)을 사용하여 분석한다. 먼저 코발트촉매 기반의 마이크로채널 고정층반응기의 반응속도식을 단일채널(single channel)에 대하여 수학적 모델링으로 표현하고, CFD로 분석하고자 하는 운전조건 및 반응기구조를 파라미터

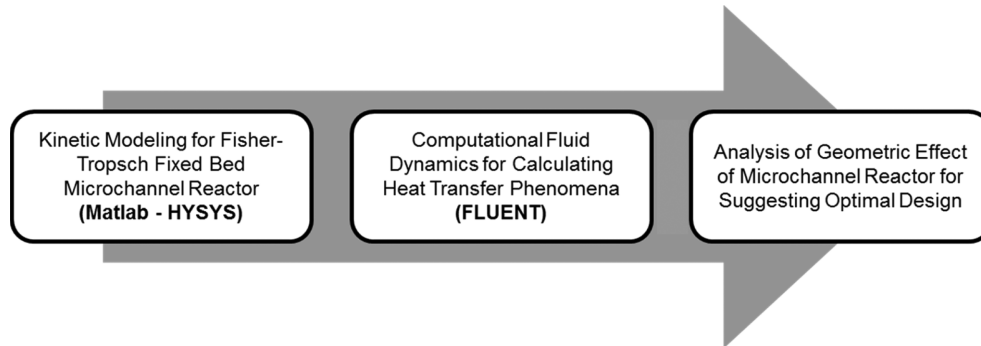


Fig. 1. Sequential methodology for understanding and suggesting the optimal design of FT microchannel reactor.

(parameter)로 설정한 뒤 반응채널의 길이 방향으로 주어지는 반응열을 함수로 얻는다. 그 후 얻어진 반응열을 고정된 상태로 CFD로 모든 다른 구조적 변수를 가지고 온 뒤 4가지의 설계변수  $C_{H_2}$ ,  $C_{CO}$ ,  $CC_D$ ,  $CP_D$ 를 변동시켜 가면서  $T_{pmax}$ ,  $T_{cmax}$ ,  $Q$ 의 값을 얻어낸다. 이는 반응열을 고정시켜 유동해석 모델의 계산 속도 및 역치(tolerance)를 높이고 반응기 구조에 대한 영향만을 보고자 하여 반응에 관련된 변수들을 고정하기 위함이다. 마지막으로 결과의 경향성을 시각화(visualization)하여 물리적 해석을 하고 최적 설계변수를 제안하고자 한다.

### 2-1. 단일 마이크로채널 고정층반응기 모델

FT 반응은 높은 발열반응(exothermic reaction)이기 때문에 반응기 앞 단에서 높은 반응열이 발생한다. 따라서 전체적으로 발열량이 동일하다고 가정해서는 안되며 반응채널 길이 방향으로 열량 발생 정도가 어떤 경향(profile)을 보이는지 수식적으로 나타내야 온도 및 열전달 해석을 정확하게 할 수 있다. 따라서 반응열 경향(heat of reaction profile)을 단일채널모델을 이용하여 얻고자 한다. 단일채널 모델은 Knochen et al.의 논문을 기반으로 모델링한다. 이 시스템에서는 물질수지(mass balance), 열수지(heat balance)를 기반으로 CoRe/ $\gamma$ - $Al_2O_3$  촉매의 1차 반응을 통해 모델을 설계한다. 일반적으로 Fischer-Tropsch 반응을 1차 속도식을 이용하여 나타낼 경우  $H_2$ 의 농도에 대해서 비례한다는 경험적 식을 활용하였다. 활성화에너지( $E_A$ )는  $120 \text{ kJ mol}^{-1}$ 로 정해졌으며 반응열은  $-170 \text{ kJ mol}_{CO}^{-1}$ 로 가정한다[20].

$$-r_{CO} = kC_{S_{H_2}} \quad (1)$$

$$k = k_0 \exp\left(-\frac{E_A}{RT}\right) \quad (2)$$

모델 안에서 반응이 진척되면서 변화하는 몰별크농도(molar bulk concentration), 분자량(molar weight), 혼합가스 열전도율(mixed gas thermal conductivity) 등의 값과 열역학적 정보들을 수치적으로 도입하기 위하여, HYSYS에 반응정보를 전달하여 GTL FT 반응에서 많이 사용되는 Peng-Robinson 상태방정식(equation of states)을 기반으로 정보를 구한 뒤 다시 matlab 모델로 전달하여 계산하는 통합모델을 사용한다. 통합모델 안에서 사용된 파라미터의 종류와 조건들은 Table 1에 자세히 나타낸다.

### 2-2. 멀티 마이크로채널 고정층 반응기 모델

고정된 반응열 곡선을 고정하고 반응기 설계변수에 따른 영향을

Table 1. Compositions of natural gas feed and refrigerant

Process channel geometry	Width ( $P_W$ ) : 1 mm
	Height ( $P_H$ ) : 3 mm
	Length ( $P_L$ ) : 17 mm
Feed operating conditions	Temperature (T) : 230 °C
	Pressure (P) : 20 bar
	Molar composition : $H_2:CO:N_2=0.64:0.32:0.04$
	Velocity ( $u_m$ ) : 0.00281 m/s
	WHSV : 400 ml/hr-gcat
Packed bed properties	Particle thermal conductivity ( $k_p$ ) : 0.3 W/m-K
	Particle mean diameter ( $D_p$ ) : 250 $\mu\text{m}$
	Bed void fraction ( $\epsilon$ ) : 0.3630
	Catalyst density ( $\rho_{cat}$ ) : $1.232 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$
	Catalyst weight ( $m_{cat}$ ) : 0.076 g

분석하기 위하여 상용 CFD 프로그램인 ANSYS사의 fluent를 이용한다. Cubic style의 마이크로채널 반응기를 모사하기 위하여 Fig. 2와 같은 base case 구조를 만들어 연구를 진행한다. 반응채널을 2층이 있으며 각 층에는 총 10개의 채널을 설정하고 냉각채널은 총 3층이 있으며 각 층에는 총 8개의 채널을 설정한다. 반응기는 편향적인 외란(disturbance)이 없을 경우에는 XZ평면에 대해서 대칭을 이루기 때문에 시뮬레이션의 계산을 용이하게 하기 위하여 대칭평면을 만들어 해석한다.

CFD의 지배방정식은 fixed bed reactor를 모사하고 유동현상을 해석할 수 있게 하기 위한 모델을 사용한다. 반응채널에서의 유체의 유동은 no reaction 조건의 species transport를 적용하고 모든 조건은 단일 마이크로채널 반응기 모델과 동일하게 주어진다. 난류 모델은 SST k- $\omega$  model을 이용하여서 near wall region에서 더 robust하고 정확한 모델로 만들고자 한다. 이 모델은 k- $\omega$ 와 비슷하나, k- $\epsilon$ 와 blended하여 표현하여 벽면 가까운 곳에서는 k- $\omega$ 를, 나머지 부분은 k- $\epsilon$ 를 사용한다. 이 모델은 벽면에서의 열전달이 중요한 모델에서 적합하다고 알려져 있어 이번 연구에 적합하다[21]. 더불어 열역학 방정식은 FT 반응에서 주로 사용되는 Peng-Robinson 방정식을 이용한다[22-24]. 냉각채널에서의 냉매는 marlotherm® SH의 특성을 가져 오며 base case에서의  $u_{in}$ 를 0.1 m/s로 기준 삼아 모든 채널에서의 volumetric flow rate를 고정시킨 형태로 모사한다. 이는 일반적으로 냉매의 recycle unit은 volumetric flow rate를 고정시킨 상태로 운전되기 때문에 이를 맞추어 공정에 도입한다.

중요한 지배방정식은 Table 2에 정리되어 있다. 운동량 보존방정식에서 중력 가속도( $\vec{g}$ )는 반응채널의 inlet 방향인  $+\vec{x}$ 로  $9.81 \text{ m/s}^2$

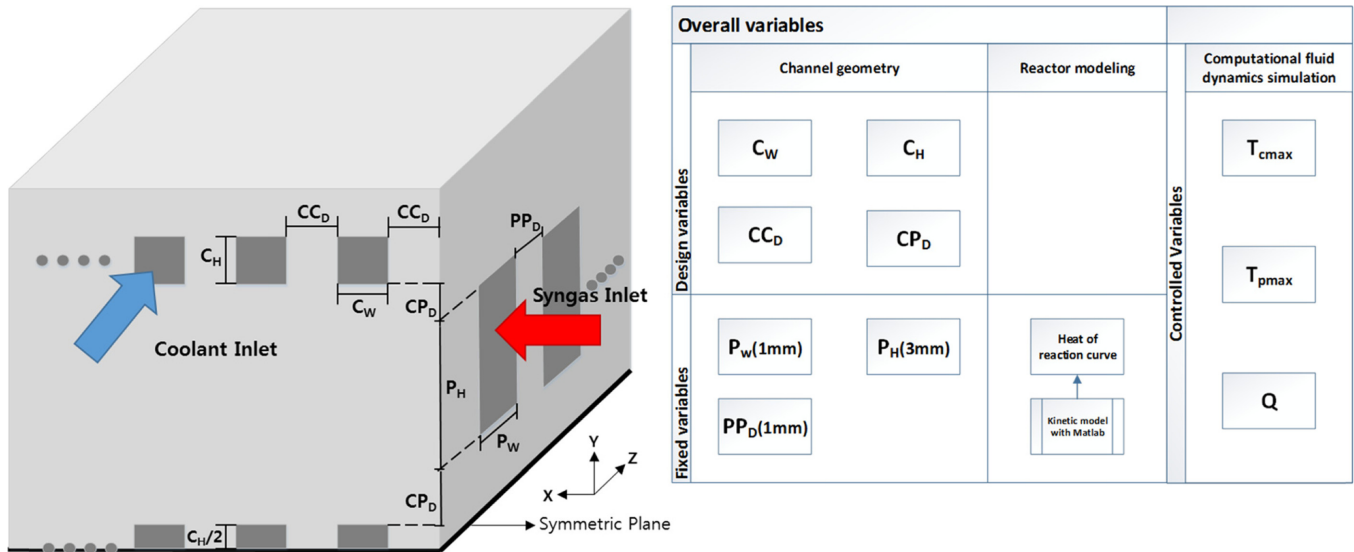


Fig. 2. General geometry of microchannel reactor with variables identification.

Table 2. Module and governing equations for CFD modeling

Module name	Governing equation	Remarks
Conservation & continuity	$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \vec{v}) = 0$	Mass
	$\frac{\partial \rho \vec{v}}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \vec{v} \vec{v}) = -\nabla P + \rho \vec{g}$	Momentum
	$\frac{\partial \rho E}{\partial t} + \nabla \cdot (\vec{v}(\rho E + P)) = \nabla \cdot [k_{eff} \nabla T - \sum_j h_j \vec{J}_j + \vec{\tau}_{eff} \vec{v}] + S_h$	Energy with heat source ( $S_h$ )
Porous media	$S_i = -\left(\frac{\mu}{\alpha} v_i + C_2 \cdot \frac{1}{2} \rho  v  v_i\right)$	Packed bed reactor

가 적용된다. 에너지 보존방정식에서는 반응에 의해서 발생하는 heat source term( $S_h$ )은 단일 마이크로채널 반응 모델을 통해서 얻어진 부피 당 반응열을 반응채널 길이에 대한 함수로 도입하여 적용하여 앞단에서는 높은 반응열이 발생하고 뒷부분으로 갈수록 덜 발생하는 실제 반응을 모사하고자 한다. 촉매패킹에 의한 porous media에서의 유동을 해석하기 위한 연속방정식에서  $\alpha$ (permeability)와  $C_2$ (inertial resistance factor)는 Ergun Equation을 통해서 구하며 식 (3)과 식 (4)로 표현된다.

$$\alpha = \frac{D_p^2}{150} \frac{\varepsilon^3}{(1-\varepsilon)^2} \quad (3)$$

$$C_2 = \frac{3.51 - \varepsilon}{D_p \varepsilon^3} \quad (4)$$

Base case를 포함하여 총 11개의 case를 통하여  $C_W$ ,  $C_H$ ,  $CP_D$ ,  $CC_D$  4가지 변수를 변동시키며  $T_{cmax}$ ,  $T_{pmax}$ ,  $Q$ 를 결과값으로 얻는다. 이때 반응채널의 길이는 고정시켰기 때문에 냉각채널 구조가 바뀌면서

냉각채널의 개수 및 모듈의 전체 크기 등은 바뀔 수 있다. 각 case에 대한 변수 값들은 Table 3에 정리되어 있다.

### 3. 결과 및 고찰

반응조건은 고정시켜서 반응열 발생이 반응기 구조와 주고 받는 영향을 무시하기 위해서 진행된 단일 마이크로채널 반응기 모델을 통해서 반응열 경향을 구한 결과는 Fig. 3과 같다. 반응속도는 식 (1)에 의해서  $H_2$ 의 농도에 비례하기 때문에 반응물이 많은 반응기 앞단에서 빠를 것을 예상할 수 있었으며 이는 결과에서도 선형적으로 반응열이 발생하는 것을 관측할 수 있었다. CO를 기준으로 한 전환율은 약 0.733로써, 상당한 발열반응을 모사하였고 온도제어 효과를 확인하는데 사용되기 적합하다. CFD에서  $S_h$ 으로 도입하기 위해서 모델의 수렴성과 계산시간을 고려하여 선형추세선 통해 수식을 얻었으며 R-square 값은 0.993로써 합리적인 추세선을 얻었다고 생각된다.

Table 3. Case specifications

Case	Base	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Variables		$C_W$		$C_H$		$CP_D$			$CC_D$		
$C_W$ (mm)	1.000	2.200	0.600	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
$C_H$ (mm)	1.000	1.000	1.000	2.000	0.500	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
$CP_D$ (mm)	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	5.000	2.000	0.500	1.000	1.000	1.000
$CC_D$ (mm)	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	2.600	1.571	0.636

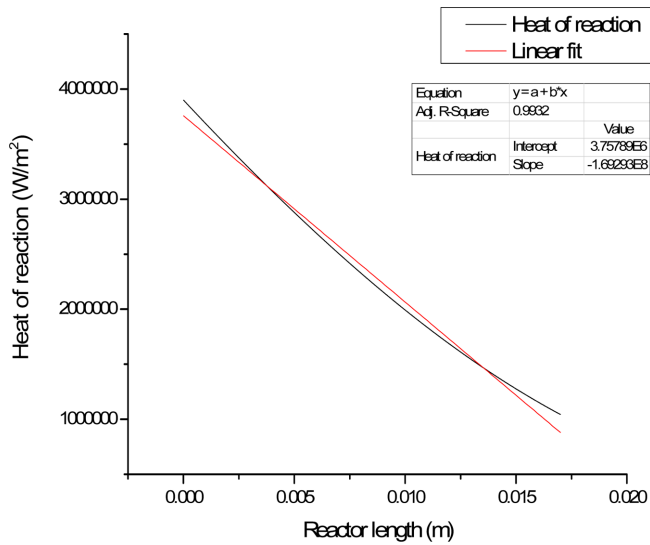


Fig. 3. Heat of reaction curve with linear fit approximation.

CFD를 통해서 분석한 멀티 마이크로채널 반응기 모델에 대한 경향성은  $Q$ ,  $T_{pmax}$ ,  $T_{cmax}$ 에 대해서 분석하였으며  $Q$ 의 경우 area weighted average를 통해서 면적에 대한 평균열유속과 area weighted integral를 통한 반응기 전체에서 냉각채널로 흡수된 총열유속을 따로 분석하였

다. 본 모델은 정상상태(steady state) 분석을 통해서 실행되었으며 모든 case에서 변수 각각의 residual 값의 한계를 갖게 하여 수치적인 오차를 최소화하고자 하였다.

4가지 변수들에 대해서 전체 냉각채널 벽면으로 이동한 총열유속과 평균열유속은 Fig. 4에 나타내었다.  $C_H$ 의 넓이는 짧을수록 총열유속과 평균열유속 모두 증가함을 알 수 있었다. 이는 냉각채널 표면적이  $C_H$ 가 변동하더라도, 반응채널의 길이를 고정했기 때문에 표면적은 변동하지 않게 되지만, volumetric flowrate를 고정하였기 때문에 유속의 수직백터를 이루는 면적이 작을수록 유속이 빨라지게 되고 이는 전단응력에 의해 벽면과 냉매중심의 유속구배를 느낄 때보다 크게 만든다. 이는 온도구배 역시 높게 만들기 때문에 더 많은 열을 제거할 수 있게 한다. 이와 반대로  $C_H$ 의 경우 짧으면 오히려 표면적이 작아져서 열 제거에 불이익이 있지만, 유속에 대한 효과로 인해 높은 열을 제거할 수 있는 것으로 보였다. 모두 채널이 작을 때 더 높은 열량을 제거하였는데 이는 유속에 의한 효과와 더불어 작은 채널이 냉매의 빠른 혼합효과(mixing effect)를 발생시켜 높은 열 교환을 성사시켰다.  $CP_D$ 는 미세하게 base case에서 가장 높은 총열유속이 이동하였고 두꺼워질수록 낮아지는 현상을 보였으나, 0.5 mm에서는 오히려 줄어드는 현상을 보여주며 다른 변수들에 비해서 그 변화량도 매우 미미하기 때문에 사실 상 거의 영향을 미치지 못하는 것으로 관찰되었다. 반응채널과 냉각채널의 열교환에서 가장 중요한 저항요인은 유체의 흐름이 만드는 film에 의한 저항임을 미루어봤을

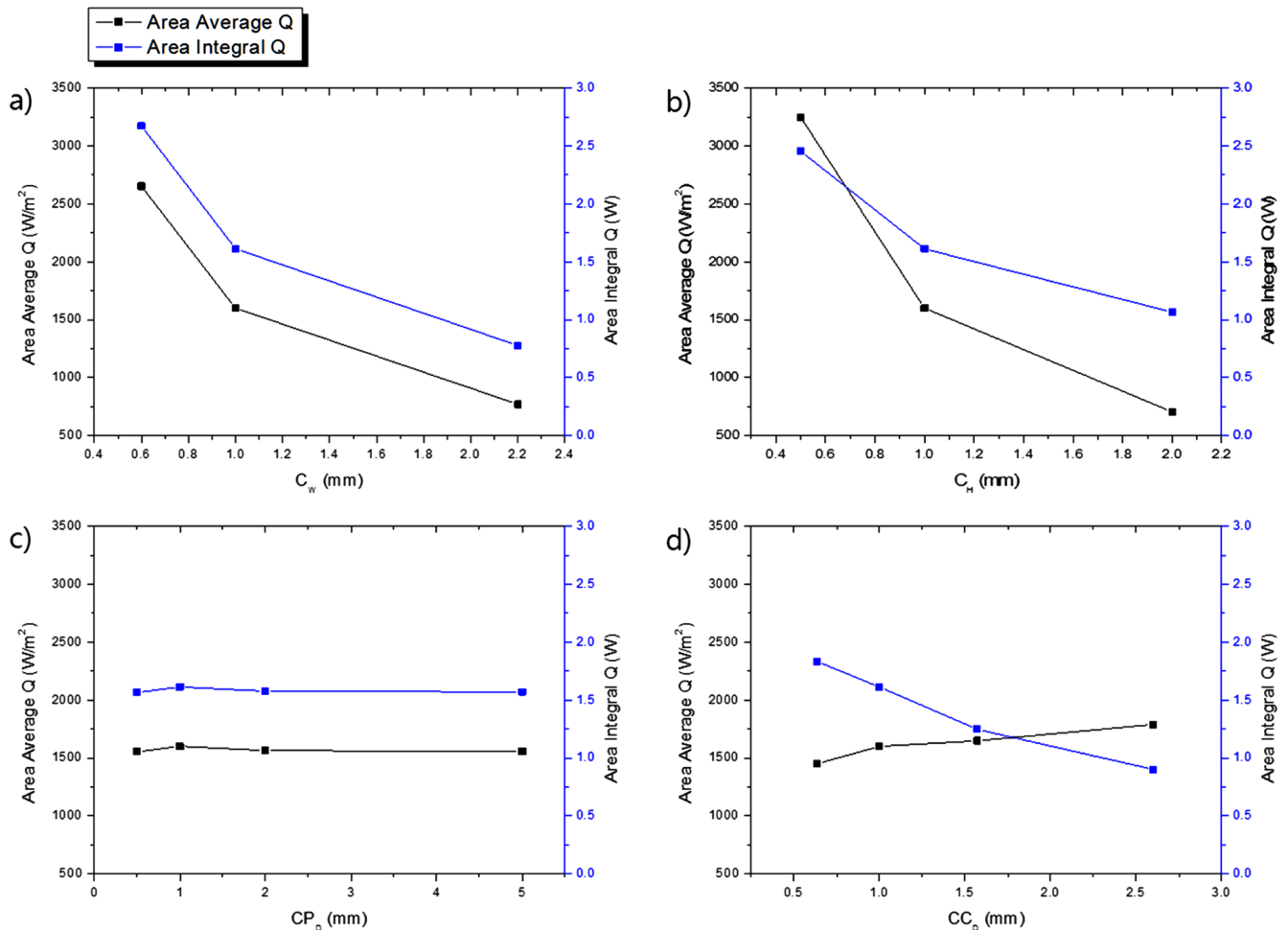


Fig. 4. Overall coolant wall heat flux trends with a)  $C_H$ , b)  $C_H$ , c)  $CP_D$ , d)  $CC_D$ .

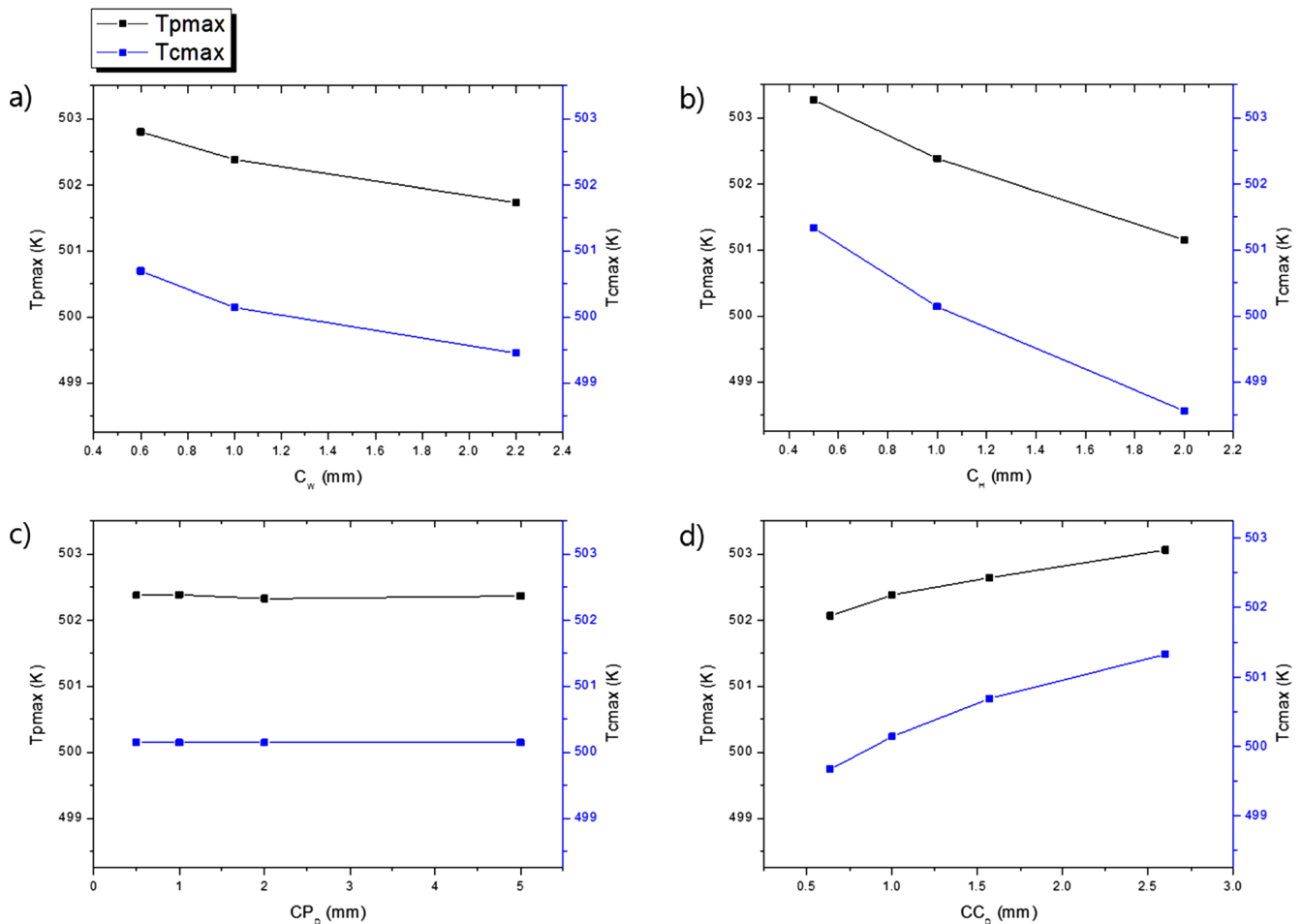


Fig. 5. Maximum temperature trend with a)  $C_H$ , b)  $C_H$ , c)  $CP_D$ , d)  $CC_D$ .

때, stainless steel로 가장된 마이크로채널 구조체에 의한 열전달 저항은 그렇게 큰 영향을 미치지 못하였다. 반면  $CC_D$ 는 채널 간격에 따라서 경향성을 뚜렷하게 보였는데, 총열유속과 평균열유속이 반대의 경향을 나타내는 것으로 관찰되었다. 냉각채널간의 길이가 짧아지게 되면 단위 길이당 존재하는 냉각채널의 표면적이 넓어지게 되고 이는 더 많은 총열유속을 제거할 수 있게 하는 동력으로 작용하나, 총열유속이 그렇게 큰 차이가 나지 않을 경우 간격이 넓을수록 단위면적당 제거해야 하는 열량이 많아지기 때문에 오히려 커질 수 있으며 이 조건에서 그 상황을 만족하는 것으로 보인다.

Fig. 5에는 냉각채널과 반응채널 각각 가장 높은 유체의 온도 ( $T_{cmax}$ ,  $T_{pmx}$ )를 각 변수에 대해서 그래프로 표기하여 온도변동의 경향성을 확인하고자 하였다.  $C_H$ ,  $C_H$ 의 경우 동일하게 값이 커질수록 온도의 절대값은 낮아지며 채널간 온도차이는 커짐을 관측하였다. 반응채널의 반응열과 초기 유입온도는 동일하기 때문에 총유속을 많이 제거하면 온도는 낮아져야 한다고 생각되어지나 이 경우는 반대로 관측되었다. 이러한 현상은 열량을 더 많이 제거했다고 하더라도 그 위치와 구조적인 영향에 의해서 특정 부분에서는 오히려 온도가 더 높게 관측될 수 있기 때문에 가능하며 냉매로 사용된 marlotherm® SH의 경우 열용량이  $2.22 \text{ kJ/kg}\cdot\text{m}^3$ 이지만 stainless steel의 경우  $0.5 \text{ kJ/kg}\cdot\text{m}^3$ 로 차이가 나기 때문에 반응기 전체적인 부피에 대해서 냉매의 비율이 높아지게 되면 더 높은 열량을 제거하였다고 하더라도 절대적인 온도는 더 낮을 수 있게 된다. 따라서 냉각채널의 부피가

커지는 방향으로 변수가 이동하게 될 경우 채널의 최대온도는 낮아지는 것으로 확인되었다. 하지만  $C_H$ 의 경우 그 trade off 관계의 비중이 그렇게 크게 나지 않아 온도변화가 거의 없다고 봐도 무방한 변화를 가져왔다.  $CP_D$ 의 경우 냉각채널의 구조적인 변화는 없었기 때문에 오직 열량이 많이 제거되면 더 낮은 최대온도를 보여줄 것이나, 변수의 변화에 대해서 제거된 총유속이 거의 변화가 없기 때문에 최대온도 역시 변화가 없는 것으로 확인되었다.  $CP_D$ 의 경우 냉각채널 간격이 줄어들수록 총열량도 많이 제거되며 냉매가 반응기 전체에서 차지하는 비율도 높아지기 때문에 최대온도도 작아지는 것을 쉽게 관측할 수 있었다.

본 연구에서는 반응기의 구조변수 4가지만 변화시키면서 열유동 경향성을 확인하였다. 하지만, 결과적으로 반응기 골격 금속과 냉매의 열용량 차이나 반응채널의 반응열의 정도 등의 외부변수에 의해서 경향성이 변화할 수 있음을 확인하였기 때문에 대표성이 부족할 수 있다. 그러나 고정된 대부분의 값들은 Velocys® 등 선진기업에서 실제 특허 및 논문에서 제안한 것과 같은 차원으로 도입하였기 때문에 극단적으로 경향성이 벗어나지는 않을 것으로 예상된다.

#### 4. 결 론

Matlab과 Aspen HYSYS를 연동하여 단일 마이크로채널 반응기를 통하여 반응열 경향성을 확인하고 이를 고정된 값으로 연동시켜,

ANSYS fluent CFD 프로그램을 통해 멀티 마이크로채널 반응기의  $C_W$ ,  $C_H$ ,  $CP_D$ ,  $CC_D$  4가지 구조 설계변수에 대한  $Q$ ,  $T_{cmax}$ ,  $T_{pmax}$  3가지의 함수 값의 경향성을 확인하는 시뮬레이션을 수행하였다. 고정층 반응기를 모사하여 반응채널과 냉각채널이 십자흐름(cross flow)로 흐를 때의 열유동을 확인한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 반응열 경향성은 반응채널의 앞 단에서 높았으며 뒤로 갈수록 거의 선형적으로 낮아졌으며 주어진 조건에서 전환율은 약 0.733으로 관측되었다.

(2) 냉각채널 넓이( $C_W$ )와 높이( $C_H$ )는 짧아질수록 총열량과 평균열량은 높아지는 것을 확인하였으며 냉각채널 최대온도( $T_{cmax}$ )와 반응채널 최대온도( $T_{pmax}$ )는 높아지는 것을 확인하였다.

(3) 냉각채널과 반응채널 사이 간격( $CP_D$ )은 열전달에 큰 영향을 주지 못하는 것으로 확인되었다.

(4) 냉각채널과 냉각채널 사이 간격( $CC_D$ )은 짧아질수록 총열량과 평균열량은 높아지는 것을 확인하였으며 냉각채널 최대온도( $T_{cmax}$ )와 반응채널 최대온도( $T_{pmax}$ )는 낮아지는 것을 확인하였다.

(5)  $C_W$ 와  $C_H$ 는 약간의 변화로도 열량 이동에 큰 영향을 끼치는 반면에 최대온도와는 trade off 관계를 가지고 있었지만,  $CC_D$ 의 경우 앞선 변수만큼 급격한 변화를 주지는 않지만 최대온도 역시 떨어뜨리는 효과를 주는 설계효과를 가져왔다.

(6) 본 연구를 통하여 멀티 마이크로채널 반응기를 설계할 시, 설계한계에 걸리지 않는 조건에서 적합한  $C_W$ ,  $C_H$ 와  $CC_D$ 를 제한할 수 있었으며 향후 반응기 설계 최적화 연구의 기초자료로 활용할 수 있을 것으로 기대한다.

## 감 사

본 연구는 국토해양부 LNG플랜트 사업단 및 2014년도 2단계 두뇌한국21 사업에 의해 수행되었습니다.

## Nomenclatures

$C_2$	: Inertial resistance factor [ $m^{-1}$ ]
$C_W$	: Width of coolant channel [m]
$C_H$	: Height of coolant channel [m]
$CP_D$	: Distance between coolant channel and process channel [m]
$CC_D$	: Distance between coolant channel and coolant channel [m]
$C_{S_{H_2}}$	: Hydrogen concentration on the surface of catalyst [ $mol/m^3$ ]
$D_p$	: Mean diameter of catalyst particle [m]
$\vec{g}$	: Gravitational acceleration [ $m/s^2$ ]
$h_j$	: Heat transfer coefficient of species j [ $W/m^2 \cdot K$ ]
$J_j$	: Diffusion flux of species j [ $mol/m^2 \cdot s$ ]
$k_{eff}$	: Effective conductivity [ $W/m \cdot K$ ]
$k_p$	: Thermal conductivity of catalyst particle [ $W/m \cdot K$ ]
$m_{cat}$	: Catalyst mass in the reactor [kg]
$P_w$	: Width of process channel [m]
$P_H$	: Height of process channel [m]
$P_L$	: Length of process channel [m]
$Q$	: Heat flux [ $W/m^2$ ]
$S_h$	: Heat source term [ $W/m^3$ ]

$T_{cmax}$	: Maximum temperature of coolant channel [K]
$T_{pmax}$	: Maximum temperature of process channel [K]
$u_{in}$	: Reactant inlet velocity [m/s]
$u_{cin}$	: Coolant inlet velocity [m/s]
$\vec{v}$	: Fluid velocity in the reactor [m/s]
$\alpha$	: Permeability [ $m^2$ ]
$\varepsilon$	: Void fraction
$\mu$	: Viscosity [ $kg/m \cdot s$ ]
$\rho$	: Fluid density in the reactor [ $kg/m^3$ ]
$\rho_{cat}$	: Catalyst particle density [ $kg/m^3$ ]
$\vec{\tau}_{eff}$	: Viscous dissipation [ $m^2/s^3$ ]

## References

1. Oxford Catalysts Group PLC., Technical experts' report on the Velocys technology prepared by Nexant, Inc., 27(2008).
2. Jun, K.-W., "GTL: Manufacturing Technology of Natural Gas to Synthetic Crude Oil," *KCS*, **36**(3), 8-15(2009).
3. TOYO ENGINEERING, "Offshore GTL Process Development By Microchannel Reactor," *Automation Systems*, **8**, 82-88(2012).
4. Jarosch, K. T., Tonkovich, A. L. Y., Perry, S. T., Kuhlmann, D. and Wang, Y., "Microchannel Reactors for Intensifying Gas-to-liquid Technology," *ACS Symp. Ser.*, **914**, 258-272(2005).
5. Bajus, M., "Microchannel-Technologies," *Petroleum & Coal*, **54**, 294-300(2012).
6. Wang, Y., Vanderwiel, D. P., Tonkovich, A. L. Y., Gao, Y. and Baker, E. G., "Catalyst Structure and Method of Fischer-tropsch Synthesis," U.S. Patent No. 6, 451, 864(2002).
7. Arzamendi, G., Diéguez, P. M., Montes, M., Odriozola, J. A., Falabella Sousa-Aguir, E. and Gandía, L. M., "Computational Fluid Dynamics Study of Heat Transfer in a Microchannel Reactor for Low-temperature Fischer-Tropsch Synthesis," *Chem. Eng. J.*, **160**, 915(2010).
8. Kandlikar, S. G. and Upadhye, H. R., "Extending the Heat Flux Limit with Enhanced Microchannels in Direct Single-phase Cooling of Computer Chips," Semiconductor Thermal Measurement and Management Symposium 2005 IEEE Twenty First Annual IEEE, 8-15(2005).
9. An, H., Li, A., Sasmito, A. P., Kurnia, J. C., Jangam, S. V. and Mujumdar, A. S., "Computational Fluid Dynamics (CFD) Analysis of Micro-reactor Performance: Effect of Various Configurations," *Chem. Eng. Sci.*, **75**, 85(2012).
10. Kusakabe, K., Morooka, S. and Maeda, H., "Development of a Microchannel Catalytic Reactor System," *Korean J. Chem. Eng.*, **18**, 271(2001).
11. Yand, J.-I., Chun, D. H., Park, J. C. and Jung, H., "Kinetic Study of the Fischer-Tropsch Synthesis and Water Gas Shift Reactions over a Precipitated Iron Catalyst," *Korean Chem. Eng. Res.*, **50**, 358(2012).
12. Guettel, R. and Turek, T., "Comparison of Different Reactor Types for Lowtemperature Fischer-Tropsch Synthesis: A Simulation Study," *Chem. Eng. Sci.*, **64**(5), 955-964(2009).
13. Derevich, I. V., Ermolaev, V. S., Mordkovich, V. Z. and Gal-dina, D. D., "Simulation of Fluid Dynamics in a Microchannel Fischer-Tropsch Reactor," *Theor. Found. Chem. Eng.*, **46**(1), 8-19(2012).

14. Van der Laan, G. P. and Beenackers, A. A. C. M., "Kinetics and Selectivity of the Fischer-Tropsch Synthesis: A Literature Review," *Cat. Rev. Sci. Eng.*, **41**(3-4), 255-318(1999).
15. Yates, I. C. and Satterfield, C. N., "Intrinsic Kinetics of the Fischer-Tropsch Synthesis on a Cobalt Catalyst," *Energy Fuels*, **5**(1), 168-173(1991).
16. Atashi, H., Siami, F., Mirzaei, A. A. and Sarkari, M., "Kinetic study of Fischer-Tropsch Process on Titania-supported Cobalt-manganese Catalyst," *J. Ind. Eng. Chem.*, **16**(6), 952-961(2010).
17. Fazlollahi, F., Sarkari, M., Zare, A., Mirzaei, A. A. and Atashi, H., "Development of a Kinetic Model for Fischer-Tropsch Synthesis over Co/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Catalyst," *J. Ind. Eng. Chem.*, **18**(4), 1223-1232 (2012).
18. Krishna, K. R. and Bell, A. T., "Estimates of the Rate Coefficients for Chain Initiation, Propagation, and Termination during Fischer-Tropsch Synthesis over Ru/TiO<sub>2</sub>," *J. Catal.*, **139**(1), 104-118(1993).
19. Knochen, J., Güttel, R., Knobloch, C. and Turek, T., "Fischer-tropsch Synthesis in Milli-structured Fixed-bed Reactors: Experimental Study and Scale-up Considerations," *Chem. Eng. Process.*, **49**, 958(2010).
20. Post, M., Van't Hoog, A., Minderhoud, J. and Sie, S., "Diffusion Limitations in Fischer-tropsch Catalysts," *AIChE J.*, **35**, 1107(1989).
21. Menter, F. R., "Two-Equation Eddy-Viscosity Turbulence Models for Engineering Applications," *AIAA J.*, **32**, 1598(1994).
22. Derevich, I. V., Ermolaev, V. S. and Mordkovich, V. Z., "Liquid-Vapor Thermodynamic Equilibrium in Fischer-Tropsch Synthesis Products," *Theor. Found. Chem. Eng.*, **42**, 216(2008).
23. Lee, C.-J., Lim, Y., Kim, H. S. and Han, C., "Optimal Gas-To-Liquid Product Selection from Natural Gas under Uncertain Price Scenarios," *Ind. Eng. Chem. Res.*, **48**, 794(2008).
24. Derevich, I. V., Ermolaev, V. S., Zol'nikova, N. V. and Mordkovich, V. Z., "Thermodynamics of Wax Formation in the Fischer-Tropsch Synthesis Products," *Theor. Found. Chem. Eng.*, **47**, 191(2013).