

# 고온촉매연소의 가스터빈 적용에 관한 수치적 연구

김형만\*, 전호식\*\*, 장석용\*

## Numerical Study on the Application of High Temperature Catalytic Combustion to a Gas Turbine

Hyung-Man Kim, Ho-Sig Jeun, Seok-Yong Jang

**Key Words:** High Temperature Catalytic Combustion(고온촉매연소), Gas Turbine Combustor(가스 터빈 연소기), Methane-Air Mixture(메탄-공기 혼합기), Pt Catalyst(백금 촉매), Honeycomb type Combustor(허니컴 형상의 연소기)

### Abstract

Numerical simulations of high temperature catalytic combustion have been performed for the application to a gas turbine combustor. Dependences of inlet temperature and pressure on the distributions of temperature and species concentrations were investigated using plug flow model with detailed homogeneous and heterogeneous chemistries of methane-air mixtures. Honeycomb type combustor deposited with Pt catalyst of 100mm in length and 26mm in diameter is used. The results show that rapid increase of temperature profile occurs earlier with the increase of inlet temperature and the decrease of inlet pressure. The condition which catalytic combustion is stabilized exists at certain range of inlet temperature and pressure. The state of catalytic combustion is also confirmed by the distributions of species concentration.

### 기호설명

$\lambda$  : heat transfer coefficient [J/cm<sup>2</sup> · s · K]  
 $\dot{w}$  : reaction rate of a reaction step [mole/s · cm<sup>2</sup>]  
 $\dot{w}_i$  : gas phase reaction rate of species  $i$  [mole/s · cm<sup>3</sup>]  
 $\dot{w}_{i,w}$  : surface phase reaction rate of species  $i$  [mole/s · cm<sup>2</sup>]  
 $\rho$  : density of mixture [g/cm<sup>3</sup>]  
 $u$  : axial velocity of mixture [cm/s]  
 $A_c$  : cross sectional area [cm<sup>2</sup>]

$A_w$  : surface area per unit length [cm]  
 $\overline{C_p}$  : mean heat capacity per unit mass of mixture [J/g · K]  
 $W_i$  : molecular weight of species  $i$  [g/mole]  
 $Y_i$  : mass fraction of species  $i$

### 1. 서론

우리 나라의 가스터빈의 생산은 1970년대 후반 부터 급격한 성장을 나타내었다. 1990년대 이후 400대 이상이 생산되고 있다. 그 이후 성능의 대 용량화, 신뢰성이 향상된 가스터빈의 개발이 진

\* 인제대학교 기계자동차공학부

\*\* 인제대학교 대학원 기계공학과

행되어 고효율, 고효율 가스터빈이 생산되고 있다. 고효율화는 터빈입구 가스온도를 상승시키는 방법으로 개발이 진행되고 있다. 연소기에서 비활성 및 손실을 방지하면서도 높은 연소효율을 얻기 위해 일부의 연료만 촉매부에서 연소시키고 나머지는 촉매 하류부에서 완전 연소시키는 방법과 추가적으로 연료를 분사하는 방법에 관하여 연구가 진행되고 있다<sup>(1,2)</sup>.

촉매연소는 화염연소와 비교하여 높은 공연비에서 운전이 가능하고 열 손실이 적어 열효율이 좋고, 국부적인 고온부가 발생하지 않아 안정적인 운전이 가능하여 연소 온도분포의 균일화를 기대할 수 있다. 또한 가연성 가스와 공기의 혼합비를 귀금속 촉매 등에 통과시켜 저온에서 연소되므로 NOx 저감이 기대되는 에너지 절약과 유해물 저감을 동시에 만족시키는 연소방법이라 할 수 있다<sup>(3-10)</sup>. 따라서 가스터빈에 적용할 수 있는 촉매연소에 대한 연구는 위에서 열거한 여러 장점이 있기 때문에 절실히 필요하다.

촉매연소에 관한 수치적 연구에서 유동장은 촉매 단면의 평균값을 이용한 1차원 모델이 사용되었으나, 반응 개시점과 유동특성에 대한 정확한 예측이 불가능하여 현재는 2차원 모델이 주로 사용되고 있다<sup>(11)</sup>. 실제 연소기에서는 난류 유동일 가능성이 높으나 본 연구의 계산 대상 및 조건에서의 유동은 층류 상태로 볼 수 있으며, 본 연구의 목적도 촉매 연소부의 상세 반응을 검토하는 것이므로 계산대상의 전 유동장은 층류로 가정하였다.

현재까지 진행된 연구의 대부분은 촉매 연소기에서 가스반응이 작다는 가정 하에 주로 표면반응만을 이용하여 해석되고 있으나, 비교적 고온인 촉매연소 영역에서는 가스반응이 활성화되어

표면반응에 영향을 미치리라 예상된다.

이에 본 연구에서는 가스터빈에 적용할 수 있는 가스반응과 표면반응을 포함하는 고온촉매연소 모델을 해석하려 한다. Fig. 1에 나타난 허니컴 형상의 촉매연소기를 대상으로 백금(Pt) 촉매 연소를 CHEMKIN 코드를 이용하여 수치적으로 해석하고 연소조건에 따른 촉매연소기의 작동을 예측하려 한다.

## 2. 수치해석 방법

### 2.1 경계대상 및 조건

본 연구는 압력손실이 적은 백금을 담지한 허니컴 형상의 촉매 연소기를 연구대상으로 하였다. 입구를 단일 채널로 가정하고, 관 직경은 26 mm, 관 길이는 100mm로 하였다. 이는 연구에서 설정할 관의 길이가 80mm이지만 결과를 좀더 정확히 알기 위하여 취하여진 값이다. 그리고 계산대상의 전 유동장은 층류로 가정하여 해석하였다.

### 2.2 지배방정식

본 연구에 사용할 고온촉매연소 해석모델은 1차원, 층류, 정상상태의 플러그유동(Plug flow)이다. 플러그 모델은 반경방향의 변화를 무시하고 축방향의 변화만을 고려하며, 이에 따른 기체상의 보존방정식은 다음과 같다.<sup>(12)</sup>

질량보존식

$$\frac{d}{dx}(\rho u A_c) = 0 \quad (1)$$

운동량 방정식

$$\rho u A_c \frac{du}{dx} = -A_c \frac{dP}{dx} - \frac{1}{2} \rho u^2 A_w \cdot f \quad (2)$$

화학종 방정식

$$\rho u A_c \frac{dY_i}{dx} = -A_w \rho \sigma_i (Y_i - Y_{i,w}) + A_c W_i \dot{w}_i \quad (3)$$

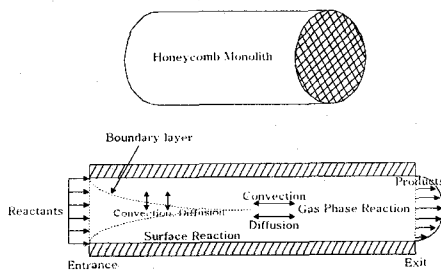


Fig. 1 Schematic diagram of honeycomb type catalytic combustor

에너지 방정식

$$\rho u A_c \overline{C_p} \frac{dT}{dx} = -\lambda A_u (T - T_w) A_w \rho \sum h_i \sigma_i (Y_i - Y_{i,w}) + A_c \sum W_i h_i \dot{\omega}_i \quad (4)$$

상태방정식

$$P\overline{W} = \rho RT \quad (5)$$

위의 화학종 방정식에서 기체상에서 촉매표면으로 확산된 화학종은 촉매표면에서 표면반응에 의해 소멸되며, 이는 다음의 촉매표면에서 질량 보존식과 에너지방정식으로 표현된다.

촉매표면에서의 질량 보존은 다음과 같다.

$$-\rho \sigma_i (Y_{i,w} - Y_i) + W_i \dot{\omega}_{i,w} = 0 \quad (6)$$

촉매표면에서의 에너지 방정식

$$-\lambda (T_w - T) - \rho \sum h_i \rho_i (Y_{i,w} - Y_i) + \sum W_i h_i \dot{\omega}_{i,w} = 0 \quad (7)$$

표면반응 메커니즘은 Fig. 2에서 나타낸 Langmuir-Hinshelwood 메커니즘으로 대표된다. 기체상의 반응물 A, B가 촉매표면으로 흡착되고, 흡착된 반응물이 촉매표면에서 반응하여 생성물을 발생시킨다. 마지막 단계에서, 표면반응에 의하여 발생한 생성물 A-B가 촉매표면에서 이탈되어 기체상으로 확산된다. 촉매표면에서의 표면반응은 실제적으로 수치계산에 적용할 수 있는 자세한 모델이 정립되어 있지 않다. 그 동안에 제안되었던 표면반응 중에서 실험결과와의 비교를

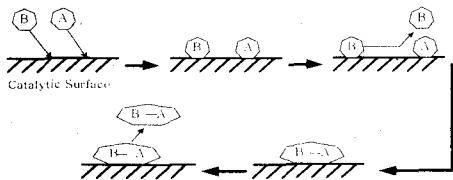


Fig. 2 Langmuir-Hinshelwood surface reaction model<sup>(13)</sup>

통하여 정확성이 검증된 모델로서는 McCarty 등이 제안한 표면반응 메커니즘이 있다. 표면반응 메커니즘은 고온촉매연소 해석모델에서 매우 중요하므로 지속적으로 참고문헌 및 연구자들과의 교류를 통하여 정확한 모델을 구하고, 이를 비교·검토할 것이다.

기체상의 화학반응 및 표면반응은 각각 CHEMKIN 및 SURFACE CHEMKIN을 이용하여 계산한다. 식 (1)-(7)에 제시된 지배방정식은 DASSL 알고리즘을 이용하여 차분화하여 계산하는 PLUG code를 이용하여 해석할 것이다.

### 2.3 표면 및 가스 반응기구

백금 촉매에서의 CH<sub>4</sub> 표면반응은 Bond(14)와 Chou(15)에 의해 제안된 상세 반응기구를 이용하였으며, 가스반응에는 GRI Mechanism(16) 상세 반응기구를 사용하였다.

수치계산에서는 표면반응과 가스반응을 동시에 고려하여 계산을 수행하였다. 그리고 수치계산에 NO<sub>x</sub> 생성반응을 포함시켰다. 이상으로 언급한 연구방법을 사용하여 복합화력 가스터빈에 적용할 수 있는 고온촉매연소를 해석하고자 한다.

## 3. 수치해석 결과

본 연구에서는 촉매연소기 내에서 일어나는 온도와 압력의 작용을 먼저 알아내는 것이 가장 중요하다고 판단하여 우선적으로 적정 온도와 압력을 찾고 찾아낸 운전 조건 하에서의 NO<sub>x</sub> 배출량을 비교, 검토하였다.

Fig. 3은 1기압에서 입구 온도를 변화시켰을 때 촉매연소기의 온도분포의 변화를 보여준다. 입구 온도가 915K 이상에서는 관내에서 급격한 온도 변화가 일어났고 입구 온도가 높아질수록 반응시작점이 입구 쪽으로 옮겨감을 알 수 있다. 그러나 910K 이하에서는 온도 변화가 거의 없음을 알 수 있다.

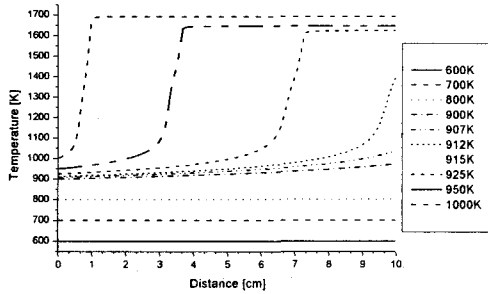


Fig. 3 Variation of temperature distribution with inlet temperature at 1 atm of inlet pressure

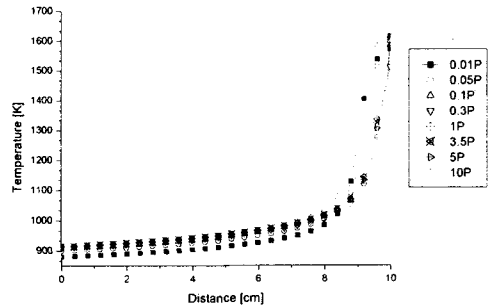


Fig. 5 Temperature distribution at the optimum inlet temperature and pressure

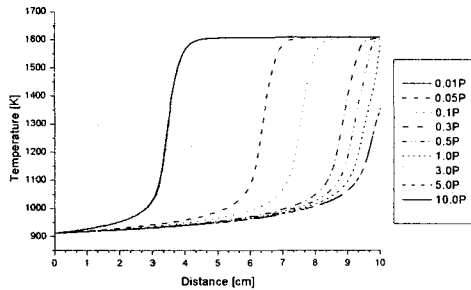


Fig. 4 Variation of temperature distribution with inlet pressure at 913K of inlet temperature

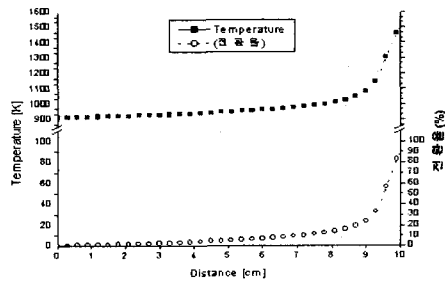


Fig. 6 Dependence of CH<sub>4</sub> conversion rate with temperature distribution at 913K of inlet temperature

Fig. 4는 앞에서 구한 적정 입구 온도의 대표 값인 913K를 입구 온도로 하여 입력 압력을 변화시키면서 출구 온도의 변화를 비교하였다. 0.1기압 이하에서는 관내에서 급격한 온도 변화가 일어났고 압력이 낮아질수록 반응개시점이 입구 쪽으로 옮겨감을 알 수 있다. 그리고 0.3기압 이상에서는 반응이 관의 위치가 비슷한 곳에서 시작됨을 알 수 있다.

Fig. 5는 입력 값을 변화시키며 구해낸 최적 압력과 온도에 따른 관내 온도분포를 나타낸다. 앞의 Fig. 3과 Fig. 4에서 찾아낸 적당한 입력 온도와 압력조건에 만족되면 출구 온도에 크게 영향을 주지 않음을 확인할 수 있다.

Fig. 6은 입구 온도 913K에서 CH<sub>4</sub>의 전환율과 온도분포를 나타낸다. CH<sub>4</sub>는 입구 쪽에서부터 조금씩 감소하고 약 85mm 지점에서 감소율이 점차적으로 커짐을 안다. 이것으로 혼합물의 전환이 빨라짐을 알 수 있다. 따라서 CH<sub>4</sub>의 감소는 더 빨라지면서 거리가 100mm에서는 0에 가깝게 됨을

알 수 있다.

Fig. 7은 입구 온도 913K에서 CO, OH 몰분율의 관내에서의 분포를 보여준다. 이때 OH는 관의 85mm에서 빠르게 증가한다. OH의 증가는 점화화 되는 시점이라고 가정할 수 있다. OH의 몰분율은 출구로 가면서 급격히 증가함을 알 수 있다. 출구부분에서 가스반응이 더욱 활성화되었기 때문에 농도가 급상승하였을 것이다. CO의 분포는 OH와 비슷한 패턴으로 나타난다. CO의 몰분율은 80mm부터 빠르게 증가한다. 이것은 0~80mm 사이는 표면반응 지역이고 80mm에서 점화가 된다는 사실을 지지한다. Fig. 8은 OH와 OH(S)의 몰분율을 보여준다. OH(S)는 입구에서부터 연속적으로 증가하다가 화염이 시작하면 급격히 감소한다. Fig. 6과 Fig. 7에 의해 0~85mm는 표면반응만 있고 그 이후 화염이 시작되면 표면반응과 화염반응이 동시에 일어난다. 위 결과들로부터 촉매 반응 부분이 중간 생성물의 농도를 변화시키기 때문에 연소부의 반응과정에 영향을 미칠 것

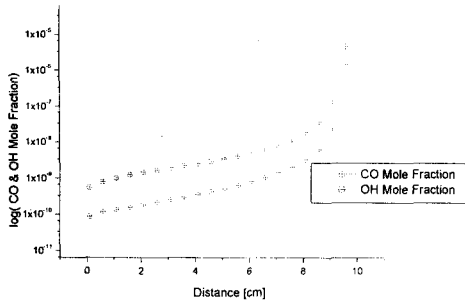


Fig. 7 Distributions of OH and CO mole fractions at 913K of inlet temperature

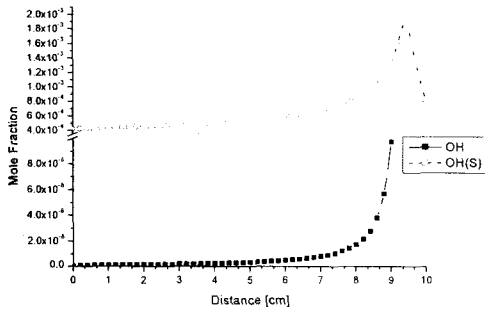


Fig. 8 Distributions of OH and OH(S) mole fractions at 913K of inlet temperature

임을 알 수 있다. 따라서 촉매연소를 가스터빈에 적용하기 위해서는 촉매부의 표면반응과 가스반응을 고려할 필요가 있다.

Fig. 9와 10은 위에서 찾아낸 최적 입구온도와 압력을 이용하여 관내의 NO<sub>x</sub> 양의 변화를 나타내었다. NO와 NO<sub>2</sub>는 비슷한 경향을 보였다. NO<sub>x</sub>의 발생량은 표면반응에서는 매우 작으나 화염반응이 시작되면서 급격히 커짐을 알 수 있다. 압력이 높아질수록 NO<sub>x</sub> 발생량이 줄어들고 발생 위치가 입구에서 가까워진다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 관 길이 100mm, 직경 26mm의 허니컴 형상의 촉매 연소기를 대상으로 메탄을 연료로 사용하여 기상반응과 표면반응을 포함하는 백금(Pt) 촉매연소를 CHEMKIN 코드를 이용하여 수치적으로 해석하였다.

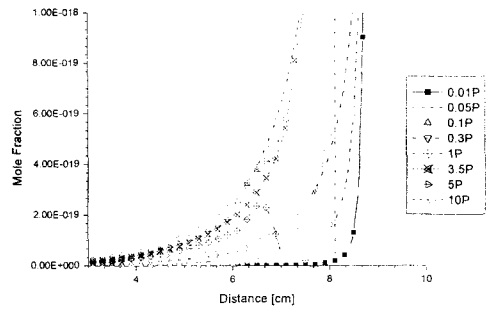


Fig. 9 Distributions of NO mole fractions at the optimum inlet temperature and pressures

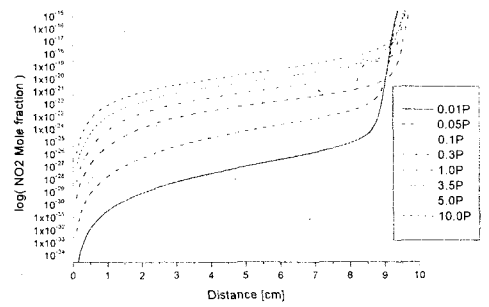


Fig. 10 Distributions of NO<sub>2</sub> mole fractions at the optimum inlet temperature and pressures

1. 촉매연소는 입구 온도와 압력에 영향을 많이 받고 그 영향이 크다는 것을 알 수 있으며 관 길이가 80mm가 되기 전에는 촉매반응은 조금씩 증가하지만 80mm부터 급격히 상승함을 알 수 있다.
2. 입구 압력이 일정 할 때에 입구 온도가 930K 이상에서는 관내에서 점화가 일어나고 900K 이하에서는 관내에서 점화가 일어나지 않는다. 915K의 그래프에서는 관 길이 80mm 이후 점화가 일어난다.
3. 촉매 반응에서 중간 생성물과 활성종의 농도 변화에 의해 표면반응과 화염반응 지역을 확인 할 수 있다. 이때 촉매 연소부에서의 NO<sub>x</sub> 발생량은 극히 미소하다.
4. 촉매연소를 가스터빈에 적용하기 위해서는 촉매연소부와 함께 화염연소부로 이루어진 복합 촉매연소기에 대해 입구 온도 및 압력에 대한 연구를 수행할 계획이다.

## 후 기

본 논문은 한국전력공사의 지원에 의하여 기초 전력공학공동연구소 주관으로 수행되었으며 관계자들에게 감사를 표합니다.

## 참고문헌

- (1) Kolaczowski S. T., 1995, "Catalytic Stationary Gas Turbine Combustors," *Trans IChemE*, Vol. 73, pp. 168~190.
- (2) 황철홍, 정영석, 이창언, 2000, "백금 촉매에 의해 안정화된 메탄의 연소 특성," 제 20회 KOSCO symposium 논문집, pp. 152~161.
- (3) Kubota, T., Yoda, Y., Hirasawa, Sasaki, M., Saito, T., Kumazawa, K. and Saito, K., 1994, "Application of Catalytic Combustion for Home Use," *Proceedings of the Int. Workshop on Catalytic Combustion*, April, 1994, Tokyo, pp. 124~127.
- (4) Beguin, B., Garbonwski, E. and Primet, M., 1991, "Stabilization of Alumina toward Thermal Sintering by Silicon Addition," *J. Catal.*, pp. 127,595.
- (5) Hicks, S. L., Barresi, A. and Pfefferle, L. D., 1990, "Flow Tube Reactor Studies of Catalytically Stabilized Combustion of Methly Chloride," *Twenty-Third Int. Combustion Symp.*, Combustion Institute, pp. 909~915.
- (6) Blazowski, W. S. and Walsh, D. E., 1975, "Catalytic Combustion: An Important Consideration for Future Applications," *Comb. Sci. Tech.*, 10, p. 233.
- (7) Pfefferle, W. C., 1978, "The Catalytic Combustor: An Approach to Cleaner Combustion," *J. Energy*, 2, p. 142.
- (8) Groppi, G., Tronconi, E. and Forzatti, P., 1993, "Modeling of Catalytic Combustors for Gas Turbine Applications," *Catal. Today*, 17, p. 237.
- (9) 서용석, 박병식, 강성규, 1997, "저 NOx형 하니컴 촉매버너의 개발," 대한기계학회논문집 (B) 제 21권 제 6호, pp. 822~829.
- (10) Ralph A., Dalla Betta, Thomas Rostrup-Nielsen, 1999, "Application of Catalytic Combustion to a 1.5 MW Industrial Gas Turbine," *Catalysis Today*, Vol. 47, pp. 369~375.
- (11) Groppi G., Tronconi E., Forzatti P., 1999, "Mathematical Models of Catalytic Combustors," *Catal. Rev. Sci. Eng.*, Vol. 42, No. 2, pp. 227~254.
- (12) Kee, R. J., Miller, J. A. and Jefferson, T. H., 1980, CHEMKIN: A General-Purpose, Problem Independent, Transportable, Fortran Chemical Kinetics Code Package. Sandia Report SAND 80-8003.
- (13) 서용석, 1999, "Combustion Characteristics of the Lean Premixed Mixture in a Catalytically Stabilized Combustor," 박사학위논문, p. 102.
- (14) Bond T. C., Noguchi R. A., Chou C., Mongia R. K., Chen J., Dibble R. W., 1996, "Catalytic Oxidation of Natural Gas over Supported Platinum: Flow Reactor Experiments and Detailed Numerical Modeling," *26th Symp. (Int.) on Combustion*, pp. 1771~1778.
- (15) Chou C. P., Chen J. Y., Evans G. H., Winters W. S., 1999, "Numerical Studies of Methane Catalytic Combustion Inside a Monolith Honeycomb Reactor Using Multi-Step Surface Reactions," *Comb. Sci. Tech.*
- (16) Gas Research Institute, 2000, NOX GRI Mech, <http://www.reactiondesign.com>.