

동축 분류 화염의 NO_x 배출 특성에 관한 연구

- 수소/메탄 화염 비교 -

배동규* · 김종현* · 이창언**

A Study on the NO_x Emission Characteristics of Coaxial Jet Flames

- Comparison of H₂/CH₄ Flame -

Dong-Kyu Bae, Jong-Hyun Kim, Chang-Eon Lee

Key Words: Jet flame, Thermal NO_x, Prompt NO_x, NO_x Emission Index(EINO_x)

Abstract

The NO_x emission characteristics of jet flames fueled with H₂ and CH₄ were studied. Experimental and numerical investigations were carried out for various flames with varying equivalence ratio, fuel flow rate and nozzle diameter. The Emission indices of NO_x(EINO_x) were measured by chemiluminescent method and calculated by simulation using detailed chemistry. The results show that EINO_x of CH₄ and H₂ flames have different trends in terms of equivalence ratio and fuel flow rate but have the same trends in terms of nozzle diameter. These differences can be explained by the following Thermal and Prompt trends in both flames. Thermal EINO_x trends can be describe in function of residence time in the high-temperature region weighted by the maximum flame temperature and Prompt EINO_x trends can be described in function of flame surface area of each combustion conditions.

1. 서론

근래에 NO_x 배출특성이 연소방식을

결정하는 중요한 인자중의 하나로 대두되면서 각종 연소기로부터 발생하는 NO_x 저감을 위한 연구가 중요하게 대두되었다. 가스 연소에서의 NO_x 생성 과정은 유동, 전열, 혼합 등의 물리적 현상과 반응 등의 화학적 현상, 그리고 이들의 복합적인 상호작용에 민감하게 영향을 받기 때문에, 가스용 연소기에서 NO_x 저감을 달성하기 위해서는 위에 언

* 인하대학교 기계공학과 대학원

** 인하대학교 기계공학과

급한 다양한 인자들에 대해 종합적인 정보를 바탕으로 NO_x 배출특성을 면밀히 검토할 필요가 있다.

CH₄ 분류 화염에서의 NO_x 생성 특성에 관한 연구를 살펴보면, Smooke⁽¹⁾ 등은 수치해석 연구를 통해 NO_x 발생은 Prompt NO가 지배적임을 밝히고 있으며, Gore⁽²⁾ 등은 부분 예혼합 및 확산화염에 대한 실험적 연구를 통해 NO_x가 적게 나오는 최적 당량비가 있음을 알아내었으나, 그 원인에 대해서는 구체적으로 논의하지 않았다. 한편, H₂ 분류 화염에서의 NO_x 생성 특성에 관한 연구들을 보면, Driscoll⁽³⁾ 등은 수소-공기 단순 확산 화염의 실험적 연구에서 NO_x 생성량을 Dahmkoler수의 함수로 나타내었고, Gabriel⁽⁴⁾ 등은 Ar과 He를 희석한 난류 확산 화염에서 연료의 Lewis number가 NO_x 생성 특성에 크게 영향을 미침을 보고하였다. 그러나 이러한 NO_x 생성 특성에 관한 연구들은 대부분 특정 조건에 대한 것이며, H₂ 연료에 대한 경우에는 주로 난류 확산 화염에서의 결과이므로, EINO_x 배출 특성에 대한 종합적인 연구는 부족한 형편이다.

본 연구에서는 실용 연소기의 화염형태와 유사한 H₂/CH₄ 분류화염을 대상으로한 상세반응 기구를 이용하였으며, 수치계산이 가능한 층류 연소조건에서의 당량비, 연료유량 및 노즐직경에 따른 EINO_x의 경향을 실험 및 수치해석을 통하여, 위 각 인자들에 따른 EINO_x 경향 및 그 원인을 조사, 분석하여, 여러가지 연소조건에 대한 EINO_x를 예견할 수 있는 상관식을 도출하고자 한다.

2. 실험 방법

본 연구에서는 Fig. 1과 같은 중심에

설치된 혼합기(CH₄+공기, H₂+공기) 노즐과 그와 동축으로 설치된 직경 50mm인 동축 주위류 노즐로 구성된 연소기에서 형성되는 층류 분류화염을 실험 및 계산 대상으로 하였다. 실험 및 계산에서 연료 노즐직경과 유량조건은 Table. 1에서 보는 바와 같이 CH₄ 및 H₂ 화염에 대해 노즐직경을 고정시키고 혼합기 유량을 변화시킨 경우(조건 A, C)와, 유량을 고정시키고 노즐직경을 변화시킨 경우(조건 B, D)로 하였다. 모든 조건에서 주위류 유량은 46 L/min으로 일정하게 하였으며, 당량비는 주어진 노즐직경과 유량 조건에 대해 예혼합화염에서 확산화염 조건까지 변화시켰다.

연소가스중의 NO 및 NO_x의 농도는 급속팽창 프루브를 이용하여 반경반향의 NO 농도의 상대변화가 ±2% 이내가 되는 충분한 하류지역에서 연소가스를 샘플링하여, 화학발광법을 이용한 질소산화물 분석기(300-CLD)를 이용하여 측정하였다. 또한 CO는 CO 가스측정기(KM-9104)를 이용하여 측정하였으며, CO₂의 농도는 유입되는 연료가 완전 연소된다

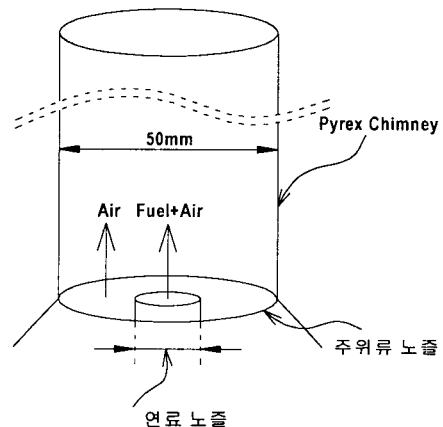


Fig.1 Schematic diagram of coaxial burner

Table. 1 Experimental condition and Boundary condition at nozzle outlet

연료 노즐(CH ₄ +Air)				연료 노즐(H ₂ +Air)				
조건	노즐 직경	연료 유량	당량비	조건	노즐 직경	연료 유량	당량비	
A	8mm	0.3 L/min(계산)	0.8	C	3.7mm	1.86 L/min	0.9	
		0.4287L/min(계산)				2.07 L/min		
		0.6 L/min(계산)						2.29 L/min
		0.8 L/min						
		1.0 L/min						
B	6 mm	0.4287 L/min	Diffusion	D	3.0mm	1.86 L/min	4.0	
	8 mm(계산)				3.4mm			
	10 mm(계산)							8.0
	12 mm(계산)							
	13.7mm							

는 조건으로부터 계산된 값을 이용하였다. 배출지수는 CH₄ 화염의 경우는 식 (1) 및 (2), H₂ 화염⁽³⁾인 경우는 식 (3)를 이용하여 계산하였다.

$$EI_i = \frac{1000x_i}{x_{CO_2} + x_{CO}} \times \frac{MW_i}{MW_F} \quad (g/kg) \quad (1)$$

$$EINO_x = EINO \frac{MW_i}{MW_F} + EINO_2 \quad (g/kg) \quad (2)$$

$$EINO_x = 0.001(MW_{NO_2}/MW_{H_2}) \times \chi_{NO_x}((1 + (4.76/\Phi_0))/2) \quad (3)$$

3. 수치 계산 방법

본 연구의 수치계산에는 종류 분류화염에 대해 계산이 가능한 CLESALF Code⁽⁵⁾를 수정하여 사용하였다. 열역학적 물성치 및 화학종의 생성열은 CHEMKIN-II Package⁽⁶⁾로, 전달 물성치는 TRANFIT Package⁽⁷⁾를 이용하여 계산하였다. 그 외 계산방법에 대한 자세한 내용은 참고문헌(8)을 참조하기 바라며 본 논문에서는 생략하겠다.

계산에 이용된 반응기구는 CH₄ 화염

의 경우, GRI-2.11이며, H₂ 화염의 경우에는 11개 화학종과 23개 반응식으로 구성된 상세 반응기구를 이용하였다. GRI-2.11 반응기구는 Thermal, Prompt NOx 생성기구를 모두 포함하고 있으므로 CH₄ 화염인 경우에는 Nishioka의 NOx 분리법에 따라 Total NOx를 Thermal NOx와 Prompt NOx로 분리하였다. 단, H₂ 화염에서 발생하는 NO는 Thermal NO만을 의미한다.

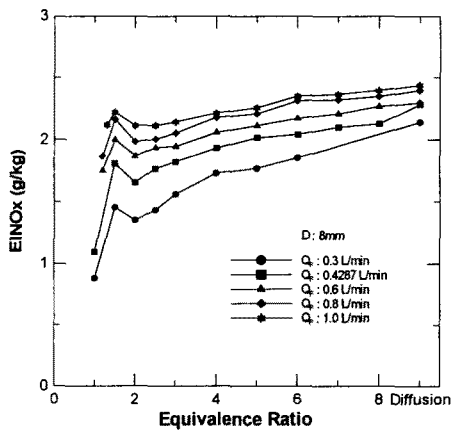
본 연구에 이용된 코드 및 계산방법은 기존에 CH₄ 분류화염의 NOx 계산에 적용하여 실험결과와의 비교를 통해 검증된 바 있으므로, 본 코드를 이용하여 H₂ 화염의 NOx 배출특성을 살펴보는 것도 타당한 결과를 얻을 수 있을 것으로 판단된다. 따라서, 이후에는 CH₄ 및 H₂ 화염의 배출특성을 실험 및 계산을 통해 살펴보고, 실험으로 규명하기 어려운 구체적인 원인에 대해서는 수치계산 결과를 이용하여 해석하고자 한다.

4. 결과 및 검토

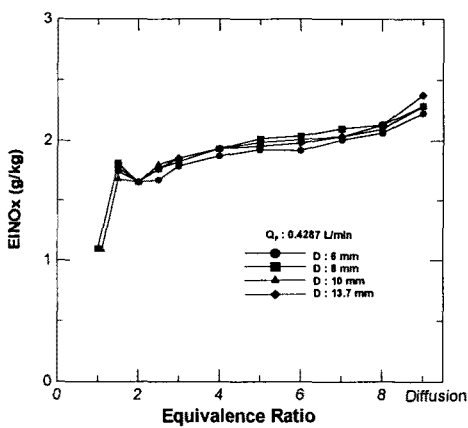
4.1 실험 결과

Fig. 2는 CH₄ 분류화염에서의 EINOx

를 도시한 것으로, Fig. (a)는 동일 직경의 노즐에서 연료유량 및 당량비를 변화시킨 경우(조건 A)이며, Fig. (b)는 동일 연료유량에 대해 노즐직경을 변화시킨 경우(조건 B)이다. 우선, 당량비 변화에 따른 EINO_x 경향은 당량비가 1.5인 부분 예혼합화염에서 최고치를 가지며, 당량비가 이보다 희박해지면 급격히 감소하고, 당량비가 1.5보다 농후해지면 당량비 2.0까지는 감소하다가 다시 완만히



(a)



(b)

Fig.2 EINO_x with (a) the variation of the flow rate and (b) the variation of diameter of inner fuel nozzle of CH₄

증가한다. 그리고, Fig. (b)에서 연료유량이 동일하면 연료 노즐 직경이 변하여도 EINO_x에는 차이가 없음을 볼 수 있다.

Fig. 3은 CH₄ 연료 유량 증가에 따른 EINO_x 증가 경향을 상세히 알아보기 위해, 대표적인 당량비에서의 유량증가에 따른 EINO_x를 도시한 것이다. 그림에서, 모든 당량비에 대해 유량증가와 더불어 EINO_x도 증가하는데, 그 증가경향이나 증가율은 CH₄ 연료의 경우에는 당량비에 관계없이 거의 일정함을 알 수 있다.

Fig. 4는 H₂ 분류화염에서의 EINO_x를 도시한 것으로, Fig. (a)는 동일 직경의 노즐에서 연료유량 및 당량비를 변화시킨 경우(조건 C)이며, Fig. (b)는 동일 연료유량에 대해 노즐직경을 변화시킨 경우(조건 D)이다. 우선, 당량비 변화에 따른 EINO_x 경향은, Fig. 2의 CH₄ 분류화염과는 달리, 모든 조건에서 당량비 4.0까지는 급격히 증가하며, 그 이후에서는 서서히 증가하여 거의 일정한 값에 도달함을 알 수 있다. 그리고, 연료유량이 동일한 경우에는, CH₄ 분류화염과 같이, 연료 노즐직경이 변하여도 EINO_x에는 차이가 없음을 볼 수 있다. 그러나, 연료유량 변화에 따른 EINO_x 경향은

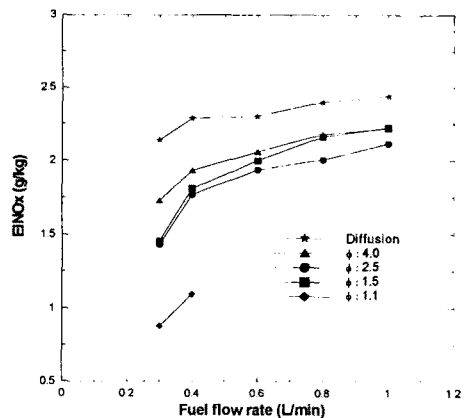


Fig.3 EINO_x with the variation of the equivalence ratio of CH₄

CH₄ 화염과는 다르다. 이에 대해서는 Fig. 5에서 논의하겠다. Fig. 5는 Fig. 4의 연료의 연료 유량 증가에 따른 EINO_x 변화 경향을 상세히 도시한 것이다. 그림에서 당량비가 작은 경우, 약 2.5 이하에서는 연료유량이 증가함에도 불구하고 EINO_x는 거의 일정한 값을 갖으나, 당량비가 이보다도 높은 경우에는 연료 유량의 증가에 따라 EINO_x도 증가

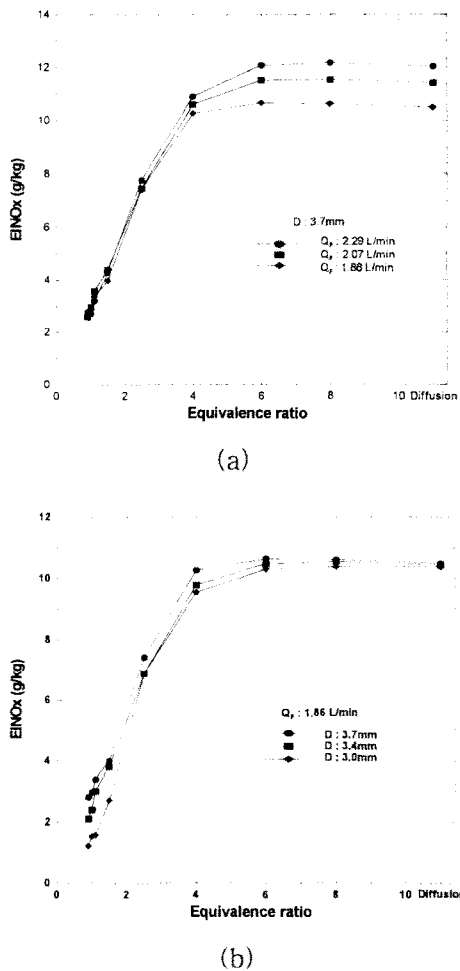


Fig.4 EINO_x with (a)the variation of the flow rate of and (b)the variation of the diameter of inner fuel nozzle of H₂

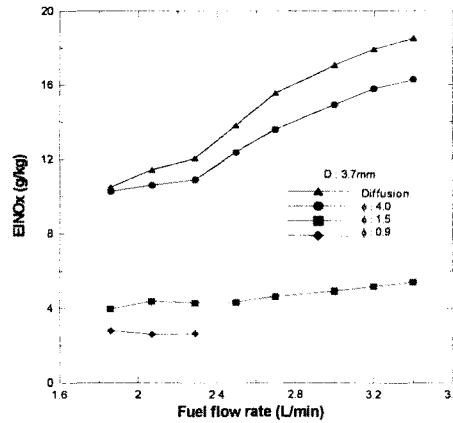


Fig.5 EINO_x with the variation of the equivalence ratio of H₂

함을 알 수 있다. CH₄ 화염의 경우, 당량비에 관계없이 유량증가와 더불어 EINO_x도 증가하였는데, 이 H₂ 화염에 대한 결과는 당량비가 높은 경우에는 CH₄의 경향과 동일하다고 할 수 있으나, 당량비가 적은 경우에는 CH₄ 화염에서의 EINO_x 경향과는 달라짐을 알 수 있다.

위 실험 결과에서, 연료종류, 유량, 노즐직경 등의 변화에 따른 EINO_x 경향을 살펴보면, H₂ 화염 및 CH₄ 화염에서의 EINO_x 경향의 상이점이 명확히 드러나나, 그 원인을 실험결과만을 이용하여 분석하기에는 불충분하여 다음에 기술하는 수치계산 결과를 이용하여 그 원인들을 분석하고자 한다.

4.2 수치해석 결과

Fig. 6은 Fig. 2(a)의 실험결과 중에 3가지 연료유량(0.3, 0.4278, 0.6 L/min)에 대한 수치해석 결과를 도시한 것이다. 그림에서, Total EINO_x는 실험결과와 동일한 것이며, Thermal EINO_x 및 Prompt EINO_x는 앞의 수치계산 방법에서 언급한 NO_x 분리법으로 구한 Thermal NO 및 Prompt NO의 배

출지수이다. 우선, Fig. 6의 Total EINOx를 Fig. 2(a)의 실험결과와 비교해 보면, 계산결과는 정량적인 측면에서 실험치보다 약 2~3배 높게 예측하고 있으나, 당량비 및 유량변화에 따른 EINOx 경향은 실험결과와 잘 일치함을 알 수 있다. 따라서, 수치계산 결과를 이용하여 실험결과에서 분석할 수 없는 여러 가지 NOx 생성 특성을 면밀히 분석해 보는 것은 충분히 의미가 있다고 할 수 있다.

위 수치계산 결과를 이용하여, NOx 반응기구별로 살펴보면, Prompt EINOx는 당량비에 대해서는 로그함수 형태로 변화하며, 연료유량 변화에 대해서는 차이가 없고 일정한 값을 갖는다. 한편, Thermal EINOx는 당량비 1.5까지는 급격히 상승하여 최고치에 도달하고, 그 이상에서는 서서히 감소하는 경향을 보이며, 연료유량 변화에 대해서는 유량비의 제곱근에 비례하여 증가함을 알 수 있다. 따라서 실험결과에서 관측된 당량비에 따른 Total EINOx 경향은 두 반응기구의 EINOx 경향의 조합으로 잘 설명될 수 있다. 그리고, 유량변화에 대한

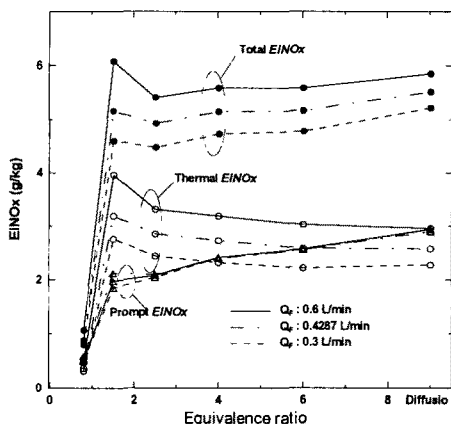


Fig.6 EINOx with the variation of the flow rate of CH₄

EINOx경향은 Thermal EINOx 경향에 기인함을 알 수 있다.

Fig. 7은 Fig. 4(a)의 실험결과에 대한 수치해석 결과로, 수치해석 결과는 실험결과에 비해 정량적으로는 약 3-4배 높게 예측되고 있으나, 당량비, 연료유량, 노즐 직경 등의 변화에 따른 EINOx 경향은 실험에서 관측되는 EINOx 경향과 잘 일치하고 있음을 알 수 있었다. 따라서, H₂ 화염의 경우에도 수치계산 결과를 이용하여 실험결과에서 분석할 수 없는 여러 가지 EINOx 특성을 분석하는 것은 충분히 의미가 있다고 할 수 있다. 단, H₂ 화염에서는 CH₄ 화염에 비해 EINOx 값이 정량적으로 더 많이 차이가 나는 것은 화염온도의 상승으로, 본 계산에서 고려하지 못한 복사효과의 영향이 더욱 현저해 지기 때문이라 판단된다. 다음 그림들은 각 화염에서의 EINOx 경향을 분석하기 위해 도시한 것으로, Fig. 8은 H₂ 분류화염에서의 동일 직경의 노즐에서 연료유량 및 당량비를 변화시킨 화염들(Fig. 4의 실험결과, Fig. 7의 수치해석 결과)에 대한 중심축상에서의 최고온도 및 1850K 이상의 영역을 통과하는데 걸리는 시간 즉, 고온 체류

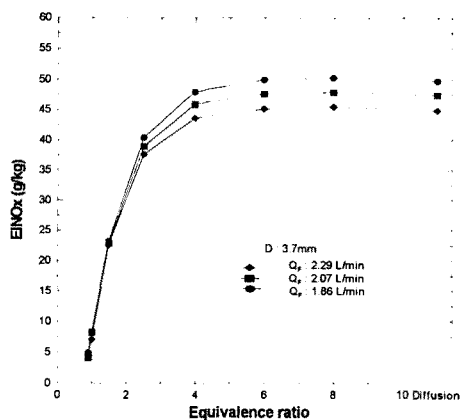


Fig.7 EINOx with the variation of the flow rate of H₂

시간을 도기한 것이다. 이 그림을 Fig. 4의 실험결과 및 Fig. 7의 수치해석 결과와 비교해 보면, H_2 분류화염에서의 당량비 변화 및 유량변화에 따른 EINOx 경향은 고온 체류시간에 최고온도를 곱한 경향과 일치함을 알 수 있다. 따라서 H_2 화염에서의 EINOx 경향은 고온체류시간에 화염온도를 가중(weighting) 해준 함수 형태로 나타낼 수 있다고 여겨진다.

Fig. 9는 CH_4 분류화염에서의 동일 직

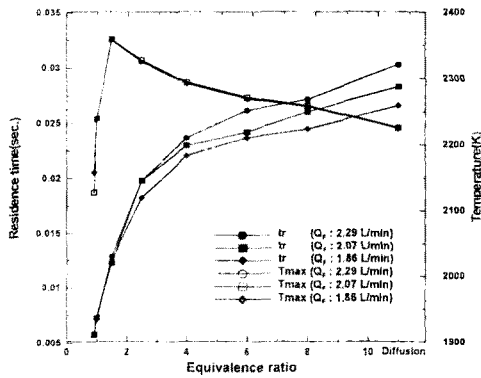


Fig.8 The residence time and maximum temperature on centerline with the variation of the flow rate of H_2

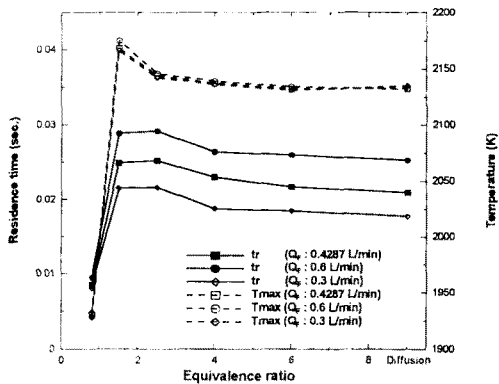


Fig.9 The residence time and maximum temperature on centerline with the variation of the flow rate of CH_4

경의 노즐에서 연료유량 및 당량비를 변화시킨 화염들(Fig. 2의 실험결과, Fig. 6의 수치해석 결과)에 대한 중심축 상에서의 최고온도 및 고온 체류시간을 앞그림과 동일하게 도기한 것이다. 이 그림을 Fig. 6에 도기한 Thermal EINOx 경향과 비교해 보면, CH_4 분류화염에서도 당량비 변화 및 유량변화에 따른 Thermal EINOx 경향은 이 그림에 도기한 고온 체류시간에 최고온도를 곱한 경향과 일치한다고 할 수 있다. 따라서 배탄 화염에서도 Thermal EINOx 경향은 고온체류시간에 화염온도를 가중(Weighting) 해준 함수 형태로 나타낼 수 있다고 여겨진다.

이전 연구⁽⁸⁾에서 Prompt NO는 CH 분포 지역의 외측 좁은 영역에서 발생하며, 그 발생량은 화염대 면적에 비례함을 지적한 바 있다. Fig. 10은 CH_4 분류화염에서의 CH의 농도분포를 도기한 것으로, Fig. (a), (b)는 연료유량이 0.4287 L/min으로 동일한 경우의 당량비가 각각 1.5, 2.5에 대한 결과이다. 그림에서 당량비 증가에 따라 화염 면적이 증가하면 CH 농도 분포 지역이 증가함을 알 수 있다. 따라서 Fig. 6의 동일 유량의 경우 당량비에 따른 Prompt EINOx 경향은 화염 면적의 변화로 잘 설명할 수 있다.

Fig. (c)는 당량비 2.5인 경우, 좌측은 연료유량이 0.3L/min, 우측은 2배 증가한 0.6L/min인 화염의 결과이다. Fig. (c)의 연료유량 변화에 따른 CH 농도분포를 살펴보면, 연료유량이 증가하면 CH의 분포영역이 크게 증가하기 때문에 Prompt NO의 생성량도 크게 증가하리라라는 것을 알 수 있다. 그림에 나타내지는 않았지만, 이 두 화염에서의 단위 면

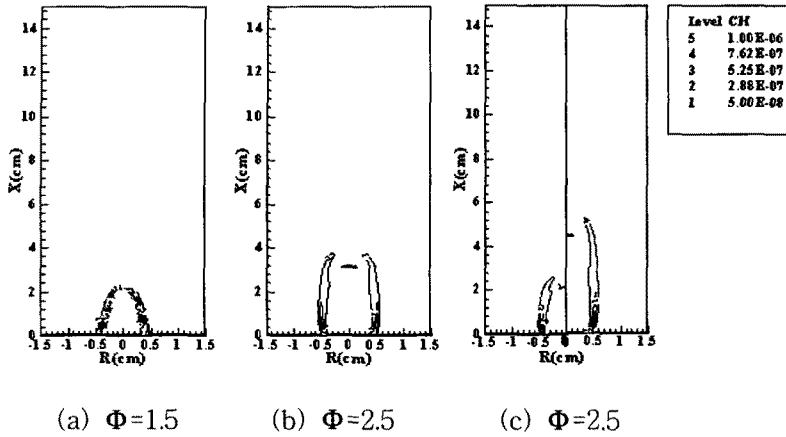


Fig.10 (a),(b) CH concentrations with equivalence ratio for fuel flow rate 0.4287 L/min and (c) comparison with the variation of fuel flow rate for $\Phi=2.5$

적당 Prompt NO 생성을 크기는 동일한 수준임을 확인 할 수 있었다. 그러나 Prompt NO 발생 면적은 연료유량에 비례하여 증가하기 때문에 증가된 연료유량으로 무차원한 Prompt EINOx는 동일하게 유지됨을 알 수 있다. 이와 같은 이유로 인해서 Fig. 6에서 보는 바와 같이 동일 당량비에 대해 연료유량이 증가하더라도 Prompt EINOx는 비슷한 수준을 유지하게 된다.

따라서 Fig. 6에 도시한 당량비 및 연료 유량 변화에 따른 Prompt EINOx 경향은 이들 변수에 따른 화염면적의 변화로 잘 설명할 수 있다. 그리고, Total EINOx 경향은 Fig. 6의 Thermal EINOx와 Prompt EINOx 경향의 조합에 의하여 결정될 수 있다.

5. 결론

층류 동축분류 CH_4 및 H_2 화염을 대상으로 실험 및 수치계산을 통해 당량비, 노즐직경 및 연료유량을 변화에 따

른 NO_x 배출특성을 검토한 결과, 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. H_2 화염의 EINOx는 당량비가 작은 영역에서 급격히 증가하며, 4.0이상에서는 완만히 증가한 후 일정해진다. 또, EINOx는 당량비가 작은 경우에는 유량 증가에 무관하나 높은 경우 유량에 비례하여 증가한다.

2. CH_4 화염의 EINOx는 당량비 1.5까지는 급격히 증가하나, 이후 당량비 2.5까지는 감소하다가 확산화염까지 다시 완만히 증가한다. 또, EINOx는 모든 당량비에서 유량에 비례하여 증가한다.

3. CH_4 화염 및 H_2 화염의 Thermal EINOx 경향은 고온 체류시간에 화염온도를 가중(Weighting)해준 함수 형태로 나타낼 수 있을 것으로 사료된다. 또한 CH_4 화염의 Prompt EINOx 경향은 당량비 및 연료 유량변화에 따른 화염면적 변화로 설명할 수 있으며, Total EINOx는 Thermal 과 Prompt EINOx 경향의 조합에 의하여 결정된다.

참고문헌

- (1) M. D. Smooke, Y. Xu, R. M. Zurn, P. Lin, J. H. Frank and M. B. Long, "Computational and Experimental Study of OH and CH Radicals in Axisymmetric Laminar Diffusion Flames", Twenty-Fourth Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute, pp.813-821, 1992
- (2) J. P. Gore, N. J. Zhan, "NOx Emission and Major Species Concentrations in Partially Premixed Laminar Methane/Air Co-flow Jet Flames", Combustion and Flame, Vol.105, pp.414-427, 1996
- (3) James F Driscoll, Ruey-Hung Chen, YoungBin Yoon, "Nitric Oxide Levels of Jet Diffusion Flames: Effects of Residence Time and Damkoler Number", Combustion and Flame, Vol. 88, pp.37-49, 1992
- (4) Raymond Gabriel, Jose E. Navedo, and Ruey-Hung Chen, "Effects of Fuel Lewis Number on Nitric Oxide Emission of Diluted H₂ Turbulent Jet Diffusion Flames", Combustion and Flame, Vol. 121, pp525-534, 2000
- (5) M. E. Coltrin, H. K. Moffat, R. J. Kee and F. M. Rupley, "CRESLAF (Version 4.0): A Fortran Program For Modeling Laminar, Chemically Reacting, Boundary-Layer Flow in Cylindrical or Planar Channels", Sandia Report SAND98-0478, 1993
- (6) R. J. Kee, F. M. Rupley and J. A. Miller, "Chemkin-II: A Fortran Chemical Kinetics Package for the Analysis of Gas Phase Chemical Kinetics", Sandia Report SAND89-8009B, 1989
- (7) R. J. Kee, G. Dixon-Lewis, J. Warnatz, M. E. Coltrin and J. A. Miller, "A Fortran Computer Code Package for the Evaluation of Gas-Phase Multicomponent Transport Properties", Sandia Report SAND86-8246, 1986
- (8) Jung Bae Park, Jong Hyun Kim, Chang Eon Lee, "Numerical and Experimental Investigation on NOx Emission Characteristics of CH₄ Jet Flames", 제21회 Kosco symposium 논문집, 2000