

변환효율 향상을 위한 횡방향 가변 셀밀도법을 사용한 자동차용 촉매변환기의 수치적 설계

정수진* · 김우승**
(2000년 4월 17일 접수)

Numerical Design of Auto-Catalyst Substrate for Improved Conversion Performance Using Radially Variable Cell Density

Soo-Jin Jeong and Woo-Seung Kim

Key Words: Catalytic Converter(촉매 변환기), Kinetics(반응 속도론), Oxidation(산화반응), Reduction(환원 반응), Substrate(담체), Conversion Performance(변환 성능)

Abstract

The optimal design of auto-catalyst needs a good compromise between the pressure drop and flow uniformity in the substrate. One of the effective methods to achieve this goal is to use the concept of radially variable cell density. But this method has not been examined its usefulness in terms of chemical behavior and conversion performance. In this work, two-dimensional performance prediction of catalyst coupled with turbulent reacting flow simulation has been used to evaluate the benefits of this method in the flow uniformity and conversion efficiency. The results showed that two cell combination of 93cpcc and 62cpcc was the most effective for improved pressure drop and conversion efficiency due to balanced space velocity and efficient usage of geometric surface area of channels. It was also found that large temperature difference between the bricks in case that the edge of the frontal face of brick has too much lower cell density(less than 67% of cell density of the center of the brick). This study has also demonstrated that the present computational results show the better prediction accuracy in terms of CO, HC and NO conversion efficiencies compared to those of conventional 1-D adiabatic model by comparison with experimental results.

기호설명

<p>$a(x)$: 촉매의 단위 체적 중 귀금속이 점유하는 표면적(m^2_{PVRh}/m^3)</p> <p>D_i : 화학종 i의 확산계수(m^2/s)</p> <p>G : 난류 운동 에너지의 생성률</p> <p>ΔH_i : 화학종 i의 반응열(J/mol)</p> <p>K_{ri} : 반응상수($Kmol/m^2_{PVRh}$)</p> <p>K_{ai} : 화학종 i의 흡착 평형 상수</p> <p>K_m : 물질전달 계수(m/s)</p> <p>L : 모노리스 길이(m)</p>	<p>M_i : 화학종 i의 분자량</p> <p>P : 압력(Pa)</p> <p>R_i : 화학종 i의 표면반응 속도(mol/m^2s)</p> <p>r_i : 화학종 i의 고유 반응률($mol/m^2_{PVRh} \cdot s$)</p> <p>$(S/V)_{cat}$: 기하학적 표면적 대 체적 비</p> <p>T : 온도(K)</p> <p>U, V, W : 직교좌표계에서의 평균속도 성분</p> <p>Y : 혼합률(Kg/Kg)</p> <p>Z : 축방향 좌표</p> <p>σ_h : 난류 Prandtl 수</p> <p>σ_r : 난류 Schmidt 수</p> <p>μ_{eff} : 유효 점성계수($Kgm^{-1}s^{-1}$)</p> <p>ϕ : 개구율</p> <p>ψ : 모노리스의 비등방성 열전도 상수</p> <p>γ : 유속 균일도^(5,7)</p>
--	--

* 회원, 한양대학교 대학원 기계공학과

** 회원, 한양대학교 기계산업공학부

E-mail : wskim@email.hanyang.ac.kr

TEL : (031)400-5248 FAX : (031)418-0153

하첨자

s : solid

g : gas

i : species i

약어

Pt : Platinum

Rh : Rhodium

CO : Carbon monoxide

THC : Total hydrocarbon

cpsc : Cells per square centimeter

PM : Precious metal

1. 서론

점차 강화되는 배기 규제를 만족시키기 위한 자동차용 촉매변환기의 성능향상에 대한 노력은 주로 저온 시동 시 빠른 활성화를 얻기 위한 연구와 모노리스 내의 고른 공간속도를 얻기 위한 유속 균일도 향상에 그 초점이 맞추어져 왔다. 전자에 관련된 방법은 EHC(Electrically Heated Catalyst) 및 EGI(Exhaust Gas Ignition)등과 같이 부대장치를 설치하여야하는 단점이 있으나 후자는 기존의 촉매변환기의 위치 및 형상을 최적화 시킴으로써 촉매변환기의 성능 및 수명을 향상시킬 수 있으므로 그동안 많은 연구가 국, 내외에서 집중적으로 수행되어져 왔다.^(1~8)

자동차에 많이 장착되는 모노리스 형 촉매변환기는 차체 하부의 공간적인 제약으로 인하여 모노리스 전면의 약 35%에 해당하는 단면적을 50% 이상의 배기가스 유량이 높은 속도로 통과하게 됨으로 인하여 촉매변환기의 수명 및 효율이 저하되게 된다.⁽⁹⁾ 따라서 유입관과 입구 확대부에 대한 형상최적화가 많이 진행되어지기는 했으나 배기관 및 모노리스의 단면적의 차이 및 공간적인 제약으로 인하여 유속 균일도 향상에 한계가 존재하는 것이 사실이다. 또한 촉매변환기의 성능에 가장 많은 영향을 미치는 인자인 모노리스의 셀밀도, 채널내의 기하학적 표면적(Geometric Surface Area:GSA) 및 개구율에 대한 연구도 역시 기존의 연구^(10,11)들에 의해서 많이 진행되어져 왔으며 GSA가 크고 개구율이 높을수록 활성화 성능에 유리하므로 이를 위하여 높은 셀 밀도 및 얇은 채널 벽두께를 지닌 모노리스에

대한 개발이 활발히 진행 중에 있다. 그러나 높은 셀밀도로 인한 높은 배압 형성이 해결해야 될 과제로 남아있다.

최근 Kim과 Son⁽⁹⁾은 모노리스 내의 반경방향의 속도구배를 완화하여 전 모노리스 영역에서 균일한 공간속도를 얻을 수 있는 횡방향 가변 셀밀도법을 제안하여 모노리스의 유속분포에 따라 반경방향으로 서로다른 셀밀도를 지닌 모노리스를 조합하여 모노리스를 구성하면 중심부로 집중되는 유량을 외곽으로 분산시킬 수 있어 유속 불균일을 완화시킬 수 있으며 압력강하를 줄일 수 있음을 밝혔다. 그러나 이러한 가변 셀 밀도법이 촉매변환기의 성능에 어떠한 영향을 미치는지 여부에 대해서는 아직 연구된 바가 없다. 따라서 본 연구에서는 3차원적 유동해석과 모노리스 내에서의 화학반응에 따른 열 및 물질전달 해석을 통합적으로 해석 할 수 있는 수치기법을 사용하여 여러 가지 모노리스의 셀 밀도의 조합 및 귀금속 촉매의 분포특성이 촉매변환기의 열 및 화학적 거동과 활성화 성능에 미치는 영향에 대한 연구를 수행하였다. 또한 본 연구에서의 해석결과를 실험값 및 기존의 단일관 모델의 결과와의 비교를 통하여 본 연구에서 사용된 수치모델에 대한 검증을 수행하였다.

2. 해석 모델

2.1 해석 대상 촉매변환기

본 연구에서는 Fig. 1과 같은 2.0 liter 4실린더 가솔린 엔진에 장착된 모노리스형 차체 밑 촉매변환기(Under body catalytic converter)(1)를 대상으로 수치해석을 수행하였다.

촉매변환기의 성능해석의 정확도에 영향을 미치는 확산계수 및 그 밖의 물성치는 Table 1과 같이 온도에 종속적으로 계산 하였다.

전술하였듯이, 횡방향 가변 셀밀도법이란 모노리스 전 영역에서 균일한 유속을 얻기 위하여 횡

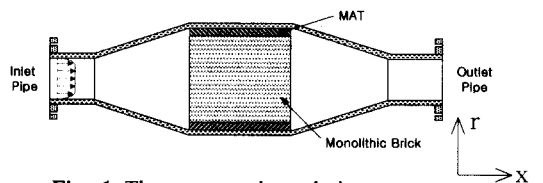


Fig. 1 The computed catalytic converter

Table 1 Physical properties involved in the model

Gas properties	density: ideal gas law conductivity($Wm^{-1}K^{-1}$): $k_g = 2.269 \times 10^{-4} T_g^{0.832}$ heat capacity($Jkg^{-1}K^{-1}$): $C_{pg} = 1009.1248 + 0.21819 T_g$ diffusivity(m^2/s): $D_i = D_i(T_{ref}) \left(\frac{T}{T_{ref}} \right)^{1.75}$
Monolith	porosity: 0.76 cell density: 62 cpsc hydraulic channel dia.: $1.1 \times 10^{-3} m$ wall thickness: $0.12 \times 10^{-3} m$ washcoat thickness: $25 \times 10^{-6} m$ geometric surface area: $27.2 cm^2/cm^3$ PM loading: $30 g/ft^3$ (Pt/Rh=5:1) heat capacity($Jkg^{-1}K^{-1}$): $C_{ps} = 1071 + 0.156 T_s - 3435 \times 10^{-4} / T_s^2$
Mat	conductivity($Wm^{-1}K^{-1}$): 0.194 heat capacity($Jkg^{-1}K^{-1}$): 1000

Table 2 Characteristics of cordierite ceramic substrates

Cell density(cells/cm ²)	31	62	73	93
Wall thickness(mm)	0.15	0.15	0.15	0.1
Material porosity(%)	35			
Geometric Surface Area (cm ² /cm ³)	20.41	27.70	29.79	34.85
Hydraulic diameter of channel(mm)	1.65	1.12	1.020	0.937
Open frontal area	0.8399	0.7744	0.76	0.816

방향으로 셀 밀도가 다른 몇 가지의 모노리스를 조합하여 국부적인 유량집중을 억제하는 것이다. 본 연구에서는 Table 2와 같은 4가지의 서로 다른 기하학적 치수를 지닌 모노리스를 각각 조합하여 셀 조합의 특성이 촉매변환기의 변환성능 및 압력강하에 미치는 영향에 대해서 알아보려 한다.

해석에 사용된 셀밀도의 조합수는 총 6개이며 Table 3에 요약하여 나타내었다.

Table 3 Summary of the cases considered in this study

case No.	cell density: cpsc frontal area: %
1	62(uniform)
2	93(45%)/62(36%)/31(19%)
3	93(48%)/62(52%)
4	73(48%)/31(52%)
5	93(48%)/31(52%)
6	93(uniform)

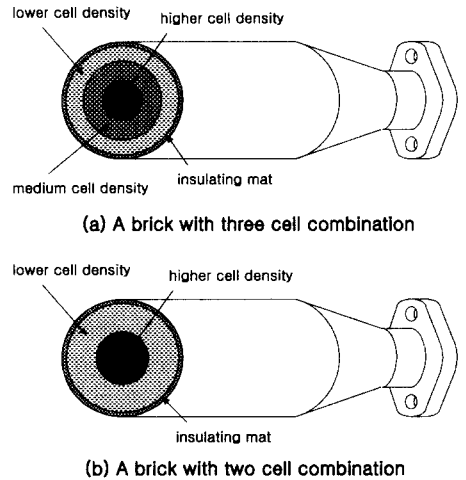


Fig. 2 Schematic diagram for two and three cell density combinations

Fig. 2에 나타낸 것과 같이 본 연구에서 고려된 셀 조합 방법은 2가지로 설정하였다. 첫 번째는 3가지의 각기 다른 셀밀도를 횡방향으로 조합하는 것이며, 두 번째는 2가지의 셀 밀도를 조합하는 것이다. 두 경우 모두 중심부에서 외곽부로 갈수록 낮은 셀밀도를 조합시켰으며 2가지 셀밀도 조합의 경우, 62cpsc의 균일밀도의 계산에서 50%의 유속이 통과하는 영역을 그 경계로 설정하였으며 3가지 조합의 경우 Kim⁽⁹⁾이 추천한 면적비를 사용하였다. 이러한 셀밀도의 조합은 빠른 유속이 통과하는 모노리스 중심부에 큰 유동저항을 발생시켜 유동을 외곽으로 분산시키는데

효과적이다.⁽⁹⁾

모노리스 전체영역에서의 균일한 속도분포를 수치화 하기 위하여 Jeong^(5,7) 등이 사용한 유속 균일도 지수(γ)를 사용하였으며 각각의 모노리스 셀을 통과하는 유속의 균형된 배분을 수치화 하여 나타내기 위하여 아래 식 (1)~(3)과 같은 유량 대 면적의 비를 나타내었다. 이 지수는 1.0에 근접할수록 균일한 유속분포를 의미하며 1.0보다 높으면 중심부에, 작으면 외곽 영역으로 유동이 집중됨을 의미한다.⁽⁹⁾

$$FR = \frac{\text{flow rate from high cell density area}}{\text{flow rate from low cell density area}} \quad (1)$$

$$AR(\text{area ratio}) = \frac{\text{low cell density area(edge)}}{\text{high cell density area(center)}} \quad (2)$$

$$FAR(\text{flow-area ratio}) = FR \times AR \quad (3)$$

2.2 화학 반응식

본 연구에 사용된 해석모델은 Chen⁽³⁾ 및 Zygourakis⁽²⁾ 등이 사용한 것과 같이 모노리스를 연속체로 가정하여 다공성 물질로 모델링 하였으며 촉매의 불활성화 및 복사에 의한 열전달은 고려하지 않았다. 또한 와이코트에서의 산화반응을 계산하기 위하여 Voltz⁽²¹⁾가 제안한 반응식에 Dubien⁽¹⁵⁾이 제안한 acetylene(C₂H₂)에 의한 억제(inhibition)효과를 첨가하여 계산하였으며 CO에 의한 NO의 산화는 Subramanian과 Varma⁽¹²⁾의 방정식을 사용하였다. 본 연구에서 고려한 화학반응식 및 반응 속도식들은 아래 식(4)와 같다.

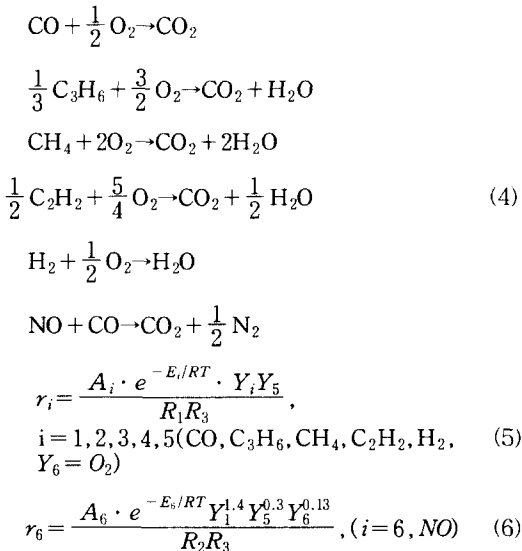


Table 4 The detailed governing equations

ϕ	D_ϕ	S_ϕ
1	0	0
$u_i, i = 1, 2$	μ_{eff}	$-\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\mu_{eff} \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right)$
h	μ_{eff} / σ_h	$u_j \frac{\partial p}{\partial x_j} + \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \left[\mu_{eff} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3} \mu_{eff} \frac{\partial u_k}{\partial x_k} \delta_{ij} \right] + s_h$
Y	μ_{eff} / σ_f	s_c

여기서,

$$R_1 = T_s [1 + k_{a1} Y_1 + k_{a2} Y_2]^2 [1 + k_{a3} Y_1^2 Y_2^2] [1 + k_{a4} Y_6^{0.7}]$$

$$R_2 = T_s^{-0.17} (T_s + k_{a5} Y_6)^2$$

$$R_3 = 1 + K_{a6} Y_{C_2H_2} \text{ 이다.}$$

2.3 지배방정식

촉매변환기 내의 유동은 모노리스 내의 층류 영역과 모노리스 상, 하류의 난류 영역으로 구분되어진다.

본 연구에 사용되어진 연속, 운동량, 농도, 에너지 방정식은 아래 식과 같은 일반적인 형태로 나타낼 수 있으며 각 방정식은 Table 4에 나타내었다.

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \phi) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j \phi) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[D_\phi \frac{\partial \phi}{\partial x_j} \right] + s_\phi \quad (7)$$

난류 상태량을 계산하기 위해서 Yakhot과 Orszag⁽²⁰⁾의 RNG k- ϵ 모델을 사용하였다.

모노리스 채널 내의 유동은 채널 선단부위를 제외하고는 Re수 1000이하의 층류이다. 따라서 모노리스 영역의 계산 요소에서는 1차원 층류유동으로 고려하였으며, 난류 Schmidt 수와 횡방향으로 운동량 생성항을 큰 값(10^{10})으로 지정하여 반경방향으로의 유동 및 물질이송을 억제하였다.

마찰 및 전이손실로 인한 모노리스 내의 압력 강하는 채널 입구의 발달영역을 고려한 Hagen-Poiseuille 방정식으로 계산하였다.^(4,7-9)

모노리스 채널 벽에서의 열전도 방정식은 아래 식 (8)에 의해서 계산되어진다.

$$(1-\varepsilon)\rho_s C_{p,s} \frac{\partial T_s}{\partial t} - (1-\varepsilon) \frac{\partial}{\partial x} \left(k_s \frac{\partial T_s}{\partial x} \right) - G \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(k_s r \frac{\partial T_s}{\partial r} \right) \quad (8)$$

$$= [S/V_{cat}] h(T_g - T_s) + a(x) \sum_{i=1}^n (-\Delta H_i) R_i$$

위식의 오른쪽 첫 번째 항은 모노리스 표면과 가스와의 열전달을 나타내며 두 번째 항은 화학반응에 의한 발열현상을 표현한 것이다.

모노리스 채널 벽 표면에서의 화학종의 농도 및 반응률의 계산은 아래의 식으로 계산된다.

$$\rho_s k_{m,i} [S/V_{cat}] (Y_{g,i} - Y_{s,i}) = a(x) \sum_{i=1}^n M_i R_i \quad (9)$$

위식의 좌측항은 gas와 벽 표면(washcoat layer)과의 농도구배에 의해서 발생하는 확산을 의미하며 우측항은 벽 표면에서의 화학반응을 의미한다. 여기서 반응률, R_i 는 식 (5)(6)으로 계산되어진다.

채널 내를 흐르는 가스의 농도방정식 및 에너지 방정식은 완전 발달된 층류로 고려하였으며, Table 4의 농도 및 에너지 방정식에 아래의 생성항을 첨가하여 계산한다.

$$s_c = \rho K_{mi} [S/V_{cat}] (Y_{s,i} - Y_{g,i}) \quad (10)$$

$$s_h = h(S/V_{cat})(T_s - T_g) \quad (11)$$

2.4 수치 계산

식 (7)로 표현되는 모노리스 상,하류 영역에서의 난류 열 및 유동 해석은 상용 프로그램인 STAR-CD⁽¹⁶⁾를 이용하였다. 이때 대류항 차분에는 SFCD(self-filtered central differencing)을 사용하였으며 비정상항은 완전 암시법을 사용하였다. 압력 및 속도의 연계는 PISO 알고리즘을 이용하였다.

본 연구에서는 식 (8)-(11)으로 표현되는 모노리스 영역에서의 불균질 화학적 거동에 의한 열 및 물질전달의 계산을 사용자 프로그램을 사용하여 자유흐름 영역의 계산과 연계하여 계산하였다.^(7,8)

채널 표면에서의 식 (4)의 화학반응에 의한 화학종의 농도 계산을 위하여 식 (9)를 2차 정도의 Newton-Raphson 법을 사용하여 계산하였다.

본 연구는 에너지 방정식과 농도방정식이 연계되어 있고, 물성치들이 온도에 따라 변화할 뿐만 아니라 모노리스 영역에서의 농도, 운동량 및 에너지 방정식에 비선형 생성항을 포함하고 있으며

로 수립된 해를 얻기 위해서는 0.1~0.5 정도의 작은 하향이완 계수가 필요하였다.

특히, 식 (9)를 Newton-Raphson법을 이용하여 계산할 경우, 유입가스의 조성비가 이론 공연비에 가까우므로 산소 및 여타 배출물들의 농도가 동시에 0 이하로 떨어질 경우, 수치적 수렴에 많은 문제를 야기 시킴으로 각 화학종에 대해서 작은 수(0.1~0.3)의 하향이완 계수를 사용하였다.

2.5 경계조건

촉매변환기는 작동이 되기 전에 정상상태로 작동하고 있다고 가정한다.^(2,7,8)

입구면에서의 반경방향 유속분포는 완전 발달된 난류유동으로 가정하여 1/7 멱법칙(one-seventh law)을 사용하여 구하였다. 입구면에서의 난류강도 I와 소산율은 아래의 식으로 계산하였다.

$$k_{in} = \frac{3}{2} (u_{in} I)^2 \quad (12)$$

$$\varepsilon_{in} = c_{\mu}^{3/4} k_{in}^{3/2} / l \quad (13)$$

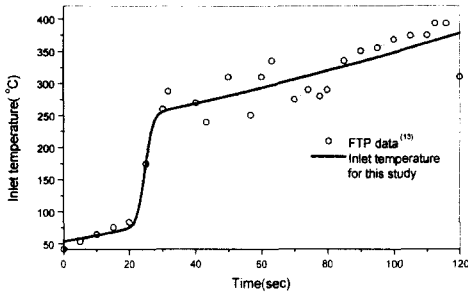
이때 입구 난류 강도 I는 유입유속의 5%로 계산하였다. 이때 전 해석 기간동안 유입속도는 일정하며 유입가스의 온도는 배기 시스템의 열적 관성으로 인하여 시간에 따라 상승하며 상승곡선의 기울기는 촉매변환기의 장착 위치에 따라 변한다.

본 연구에서는 동일한 촉매변환기에 대해서 Siemund⁽¹¹⁾가 실험한 경우인 유입가스의 온도가 500에서 700K까지 상승하는 온도상승 곡선을 유입가스 온도로 사용하여 실험적 검증을 수행하였으며 모노리스의 횡방향 셀밀도 변화가 성능 및 워업 패턴에 미치는 영향에 대한 연구를 위하여 Fig. 3 (a),(b)와 같은 4실린더 2.0liter 엔진의 경우 FTP-75 주행 시 촉매변환기 내로 유입되는 유속 및 온도를 유입 경계조건으로 사용하였다.⁽¹³⁾ 본 해석의 경우 유입되는 가스의 농도는 일정하게 유지하였다. Table 5에 유입되는 각 화학종의 농도를 나타내었다.

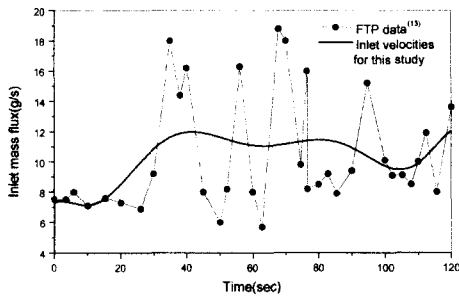
출구면에서는 아래식과 같이 모든 종속변수의 확산항을 출구방향에 대해서 0으로 설정하였다.

$$\frac{\partial \phi}{\partial n} = 0 \quad (14)$$

이때 $\phi = u_i, T, k, \varepsilon$ 이다.



(a) Inlet temperature variation during FTP



(b) Inlet velocity variation during FTP

Fig. 3 Inlet conditions of the catalytic converter during the first 120 seconds of the FTP-75 test cycle

Table 5 Concentrations of species in inlet gas

CO	1.52%
C ₃ H ₆	1898 ppm
CH ₄	176.9 ppm
C ₂ H ₂	1 ppm
H ₂	0.39%
O ₂	2.06%
NO	825 ppm

모노리스 입, 출구에서의 경계조건은 가스용 채널간의 열전달량은 미소하다고 가정하여 단열 처리 하였으며 모노리스의 외피와 외부 공기와의 자연대류에 의한 열전달 계산은 Rich⁽¹⁴⁾의 실험식을 사용하였다.

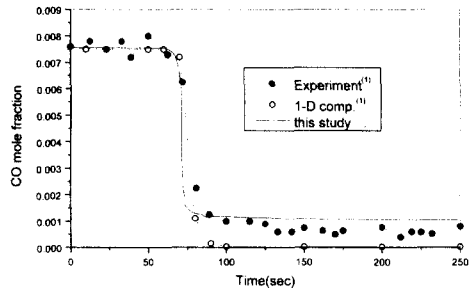


Fig. 4 Comparison of the experimental and calculated CO mole fractions

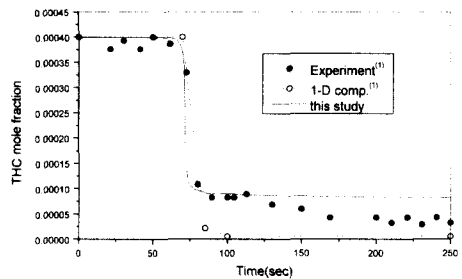


Fig. 5 Comparison of the experimental and calculated HC mole fractions

3. 결과 및 고찰

Figs. 4~6에는 해석 대상 촉매변환기의 모노리스가 62cpsc로 균일한 경우 출구로 배출되는 배출물(CO, HC, NO)의 농도를 시간에 따라 나타내었으며 해석 결과는 Siemund⁽¹¹⁾의 실험 및 1-D 단일관 모델의 결과와 비교하여 본 연구에서 사용한 해석방법에 대한 성능 평가를 시도하였다.

비교결과 1-D 단일관 모델의 계산결과는 최종 배출물의 농도를 하향평가하고 있지만 본 연구에서 해석한 결과는 실험결과에 보다 잘 일치하고 있음을 알 수 있다. 이러한 원인은 본 연구의 다차원 유동해석 및 화학반응을 수반한 열 및 물질전달의 직접적인 연계계산이 유속 불균일에 대한 모노리스 내의 배출물의 농도 및 온도를 보다 현실적으로 표현할 수 있기 때문에 모노리스 내에서의 불균일한 공간속도 분포에 의한 촉매변환기의 성능저하를 정확히 예측할 수 있기 때문이다.

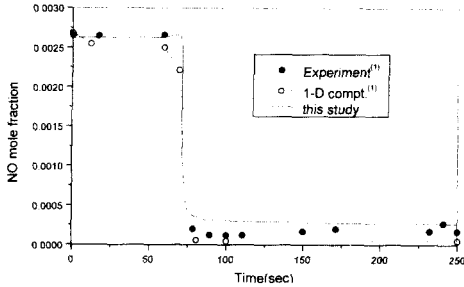


Fig. 6 Comparison of the experimental and calculated NO mole fractions

위의 실험적 검증을 통하여 본 연구에서 사용된 해석기법의 타당성을 검증하였으며 촉매변환기의 활성화 전 단계에서의 배출물의 정확한 예측을 위해서는 기하학적 특성상 발생하는 유속분포에 의한 모노리스 내의 다차원적 온도 구배를 표현할 수 있어야 함을 알 수 있다. 그리고 촉매변환기의 성능해석을 위해 사용해 왔던 기존의 일차원적 해석기법과의 비교를 통하여 일차원적 해석방법의 예측한계를 나타내었다.

Fig. 7에는 Table 3에 나타낸 것과 같이 6가지의 셀조합에 따른 모노리스 입구에서의 유속 균일도 지수를 나타내었고 Fig. 8에 각 조합에 따른 압력강하를 나타내었다. 유속균일도의 경우 93cpsc의 경우가 모노리스에서의 큰 저항으로 인하여 확대부에서의 유속 재분배 기간이 길어 가장 높지만 큰 압력강하가 일어나고 있음을 확인할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 93cpsc의 균일 밀도인 경우에 대한 더 이상의 비교는 수행하지 않았다. 그러나 가변 셀밀도법을 사용한 경우들은 균일밀도인 62cpsc나 93cpsc의 경우보다 상당히 낮은 압력강하를 나타내고 있다. 특히 case3(93cpsc/62cpsc)인 경우는 유속 균일도가 97%로 높으면서 62cpsc의 균일 밀도의 경우와 비교하여 약 68% 정도의 낮은 압력강하를 나타내고 있음을 알 수 있다. 이러한 결과는 엔진의 성능면이나 촉매변환기의 성능면에서 매우 고무적인 결과이다.

Fig. 9에 $t=200s$ 에서의 식 (3)에 의해서 정의된 유동-면적비 지수, FAR를 각 셀 조합에 대해서 나타내었다. 모든 경우의 FAR이 1보다 작은 것은 본 연구에서 아이들링 시에 대한 유입유량을 유입 경계조건으로 사용하였으므로 유동방향으로의 관성이 작아 유입가스가 중심부의 높은 셀밀

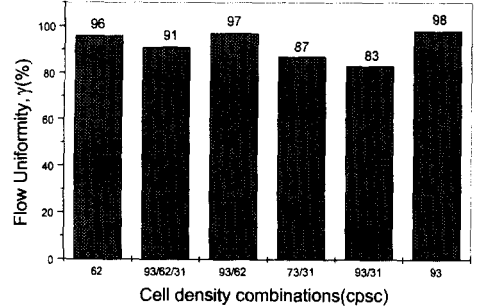


Fig. 7 Flow Uniformity index with respect to cell arrangement

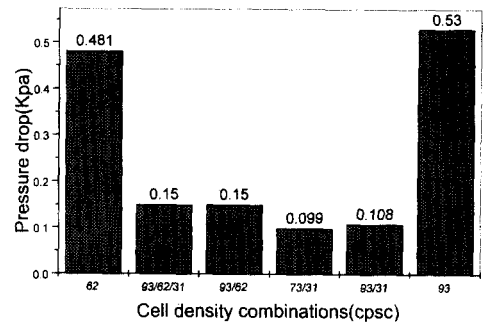


Fig. 8 Pressure drops for various cell arrangements

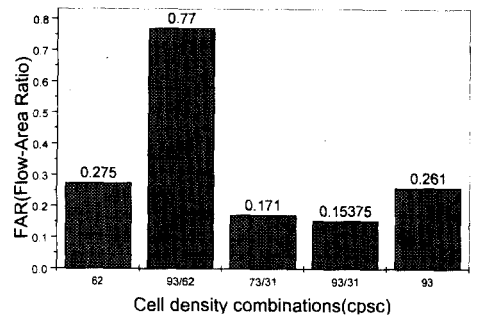


Fig. 9 The flow-area ratio for two cell combinations

도로 인한 저항을 이기지 못하여 외곽으로 집중되기 때문이다. 그러나 case 3의 경우는 1에 가까운 유량 면적비를 나타내고 있음을 볼 수 있는데 이는 중심부와 외곽부의 각 모노리스로 통과하는 유량이 비교적 고르게 분포되고 있음을 나타내는 것이다.

Fig. 10에 각 셀 조합에 따른 CO 및 THC에 대

한 변환효율을 나타내었다. FAR을 유속균일도가 가장 높은 case 3의 경우에서 가장 높은 변환효율을 얻을 수 있음을 볼 수 있다. 이 경우의 외곽영역의 셀밀도는 중앙영역의 67%이며 높은 효율을 나타내는 것은 윽업 초기의 균일한 유속분포로 인한 모노리스 전 영역에서의 균일한 공간속도 및 온도상승으로 인하여 활성화 시 모노리스 전 영역에서 효율적인 화학반응이 일어날 수 있기 때문이다. 또한 3가지의 셀밀도를 조합한 case 2의 경우는 case 3의 경우보다 정상상태에 도달하는 시간이 길어 낮은 활성화 성능을 보이고 있다. 이는 외곽부에 중간영역의 모노리스(62 cpsc)의 50%의 낮은 셀밀도(31cpsc)의 모노리스가 위치하고 있으며 유동 단면적도 상대적으로 작아 이 영역을 빠른 유속이 통과하기 때문에 외부와의 열손실이 커 이 부분의 활성화 시간이 지연되기 때문이다. 그리고 case 4, 5의 경우, 중앙부의 셀 밀도보다 각각 42.5%, 33%의 낮은 셀 밀도의 모노리스가 외곽부에 위치하고 있어 Fig. 6, Fig. 8에서 볼 수 있듯이 중심부와의 셀밀도 차이가 커 유입 가스가 중앙부의 유동저항을 이기지 못하고 상대적으로 저항이 작은 외곽부위로 유속이 집중됨으로 인하여 가스와 채널면과의 불충분한 접촉시간과 외부로의 과도한 열손실 때문에 case 3에 비하여 낮은 활성화 성능을 보이고 있음을 알 수 있다. 그러므로 외곽부와 중심부와의 셀밀도 차이가 크지 않도록 설계가 이루어져야 하며 중앙부의 높은 셀밀도와 큰 기하학적 표면적을 이용한 유입 열유속의 효율적인 열전달 효과와 외곽부의 낮은 셀밀도로 인한 낮은 열적 관성효과를 충분히 이용할 수 있도록 각 영역의 최적 셀밀도 비를 선정해야 한다. 본 연구 결과로부터 차체밀 촉매변환기의 경우 2 셀밀도 조합이 적합하며 외곽부의 셀밀도는 중앙부의 67% 이상이어야 함을 알 수 있다.

Fig. 11에 case 3의 경우의 활성화 초기 기간인 t=90s 와 100s에서의 모노리스 내의 가스와 채널벽의 온도장을 나타내었다. 이 경우 특징적인 것은 최고온도(hot spot) 영역이 중심부의 고밀도 모노리스(93cpsc)에서만 존재한다는 것이다. 이는 중심부 보다 빠른 유속이 통과하는 외곽부의 경우는 입구에서 유입가스에 의한 과도한 대류냉각 및 외부와의 열손실로 인하여 입구에서 빠른 화학반응을 기대 할 수 없으나 높은 GSA를 지닌

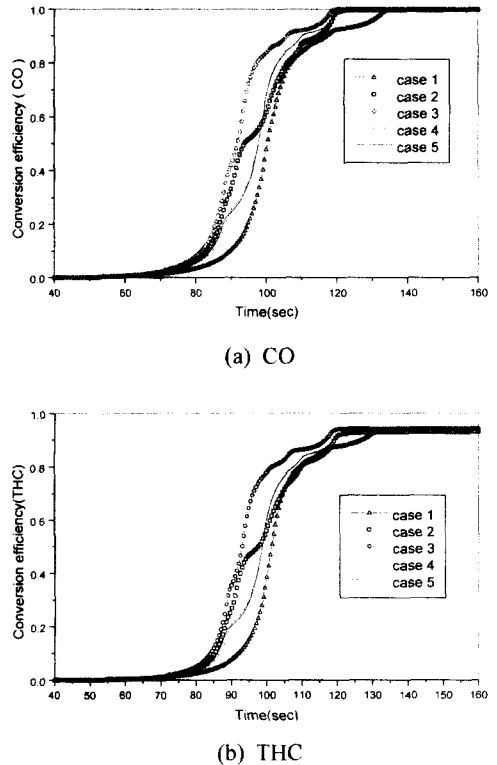


Fig. 10 Conversion efficiency of CO and THC with respect to various cell combinations

중앙부의 모노리스 내에서는 가스에서 채널 벽면으로의 효율적인 열전달 및 충분한 접촉시간으로 인하여 입구에서의 활발한 화학반응을 기대할 수 있기 때문이다. 따라서 Langmuir-Hinshelwood형 반응속도식의 특성 상 상대적으로 낮은 반응물의 농도가 존재하는 모노리스 하류에 온도의 최고점이 존재하게 되는 것이다. 이러한 최고 온도점은 채널벽면의 축방향 열전도에 의해서 상류로 전파되고 있음을 확인할 수 있다.

Fig. 12에 case 3과 case 5의 경우의 CO 및 NMHC(Non-Methane Hydrocarbon)의 농도분포를 t=90, 100, 110s의 경우에 대해서 나타내었다. 두 경우 모두 중앙부에 93cpsc의 밀도를 가지는 모노리스가 위치하여 있지만 case 5의 경우는 위쪽에 31cpsc의 낮은 셀 밀도가 위치하고 있으므로 Fig. 8에서 보였듯이 이 영역으로 많은 양의 유량이 통과하게 된다. 따라서 case 5의 경우는 중앙부에는 입구영역에 가까이 반응면이 형성되어 있는

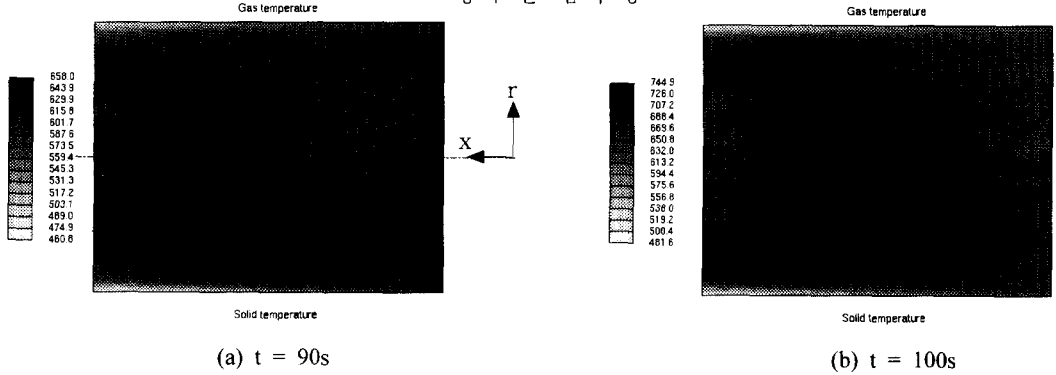


Fig. 11 Temperature(K) distribution of the gas and monolith wall at $t=90s$ and $100s$ for the case 3

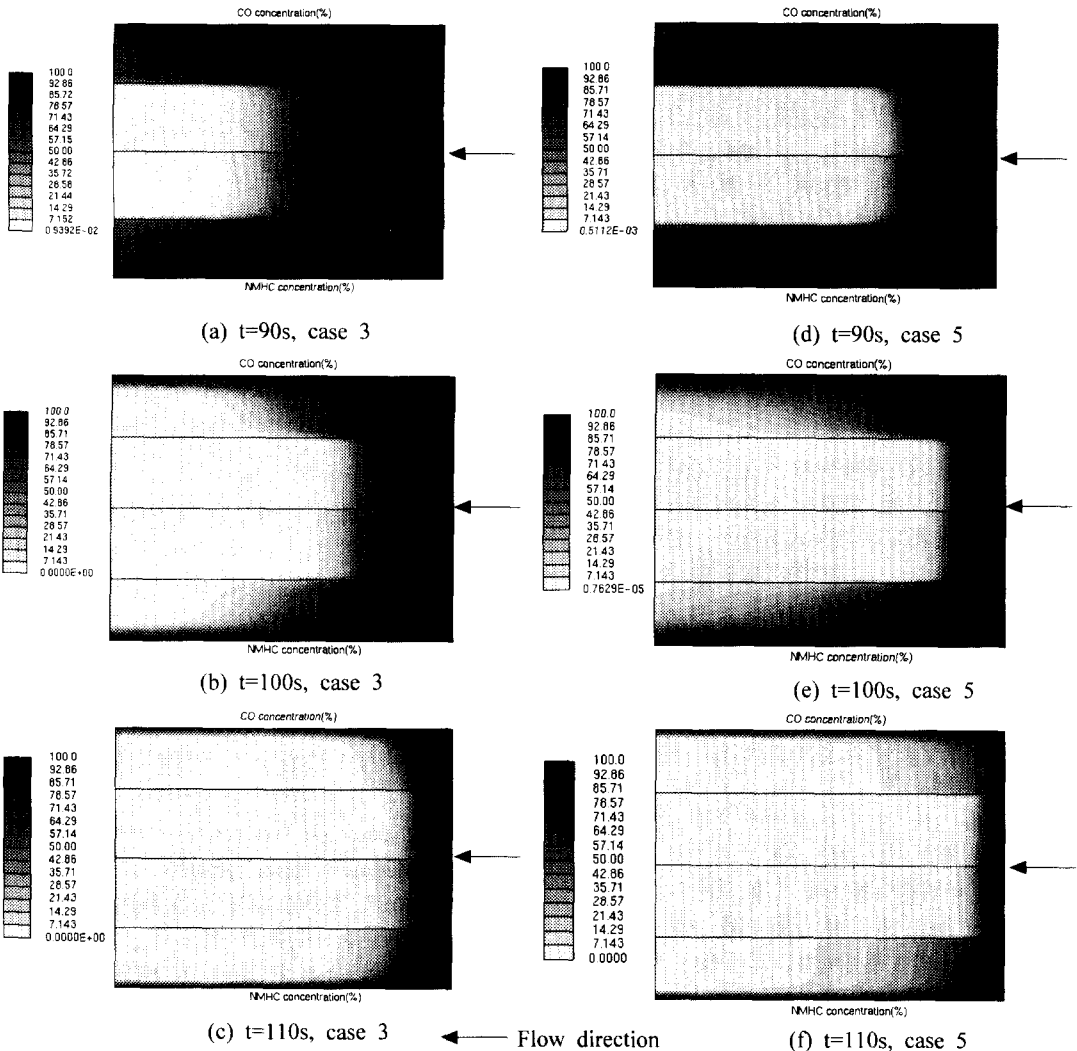


Fig. 12 Cross-sectional plots of CO and THC concentration(divided by inlet concentration) contours for the case 3 and 5

반면 외곽부에는 짧은 잔류시간과 외부로의 많은 열손실로 인하여 반응면이 하류로 두껍게 형성되어져 있음을 볼 수 있다. 따라서 많은 양의 배출물이 외곽부를 따라 변환되지 않고 배출되므로 Fig.10에 나타난 바와 같이 낮은 변환효율을 나타낸다. 이에 비해 case 3은 외곽부에서 가스의 잔류시간이 길어 상대적으로 입구면 가까이에서 반응면을 형성하고 있음을 볼 수 있다. 참고로 Fig. 11과 Fig. 12에서 모노리스 내에 그려진 선들은 각 셀밀도의 경계를 의미한다.

Baratti⁽¹⁷⁾은 촉매분포 형상에 대한 최적화 연구를 수행한 결과 최적 촉매분포는 Dirac delta 함수의 형태로 나타남을 보고한바 있으며 Baba⁽¹⁸⁾등은 모노리스 입구에서 20~30mm 영역에 고농도의 촉매를 분포시킬 경우 활성화 시간을 단축시킬 수 있음을 밝혔다. 최근 Tronci⁽¹⁹⁾ 등도 모노리스형 촉매변환기에 대해 촉매분포에 대한 최적화 계산을 통하여 입구쪽 영역에 고농도의 촉매를 분포시킬 것을 제안하였다. 따라서 본 연구에서는 case 2 및 case 3에 대해서 Fig. 13에서 나타낸 것과 같이 2가지 모드로 촉매를 분포시켰다. 첫 번째는 중심부보다 비교적 많은 유량이 집중되는 외곽부에 위치한 모노리스 입구 영역(15%)에 균일분포의 경우의 5배 농도의 촉매를 도포하였고 나머지 하류 영역에 1/3배 농도의 촉매를 분포시켜 외곽부에서의 활발한 화학반응을 기대하였으며 중앙부에 위치한 모노리스의 촉매농도분포는 균일하게 주었다. 두 번째는 전체 모노리스 입구 영역(15%)에 5배의 농도를 분포시켰으며 나머지 하류 영역에 1/3배의 농도를 분포시켰다.

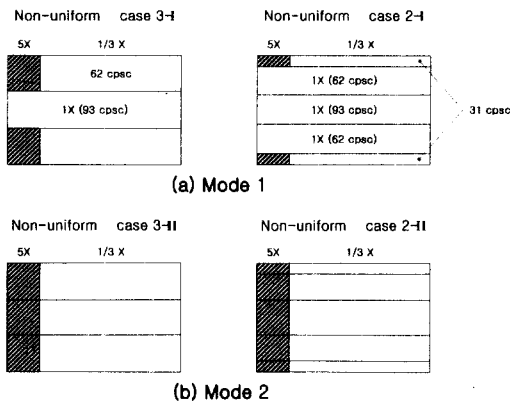
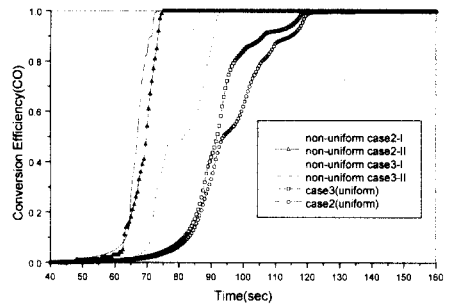


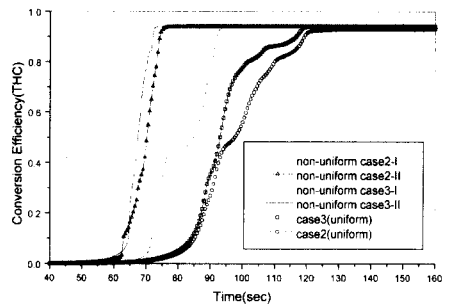
Fig. 13 Schematic diagram for non-uniform loading patterns

Fig. 14에 case 2 및 case 3에서의 균일 농도분포 및 2가지의 불균일 농도분포의 경우에 대해서 CO 및 THC의 변환효율을 나타내었다. 결과에서 보듯이 case 3의 불균일 농도분포 모드 II의 경우가 가장 높은 활성화 성능을 나타내었으며 모드 I의 경우는 두 경우 모두 균일 농도분포의 경우보다는 향상된 활성화 성능을 보이고 있으나 활성화 기간 말기에 변환효율이 급격히 저하함을 볼 수 있다. 이는 외곽부의 낮은 셀밀도를 지닌 모노리스 유입부에서 빠른 유입가스 유입으로 인한 과도한 냉각 때문이다. 따라서 횡방향 가변 셀밀도법에 의한 모노리스 설계 시 가장 중요한 것은 전체 모노리스에서의 균일한 유속분포에 의한 균일한 공간속도를 얻는 것임을 알 수 있다.

Fig. 15에는 case 2와 case 3에 대한 각 불균일 촉매분포 경우에서 중심부와 외곽부의 모노리스의 채널벽면에서의 평균온도차를 시간에 대해서 나타내었다.



(a) CO



(b) THC

Fig. 14 Conversion efficiency of CO and THC for various cell combinations with non-uniform loadings

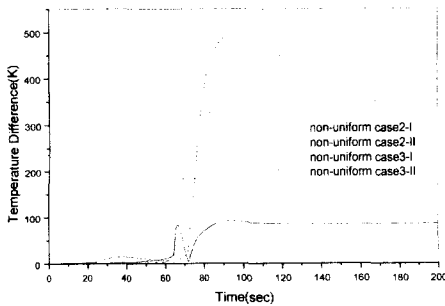


Fig. 15 Averaged temperature differences between the regions with different cell density in the monolith with non-uniform loading for the case 2 and 3

그림에서 볼 수 있듯이 활성화가 일어나기 시작하는 시점에 각 모노리스간의 온도차이가 급증하고 있음을 확인할 수 있다. 특히 외곽부의 낮은 셀밀도의 모노리스 입구에만 고농도의 촉매를 분포한 불균일 농도분포 모드 I의 경우는 중심부보다 많은 양의 배출물이 고농도 촉매가 분포되어 있는 외곽 모노리스 영역으로 유입되므로 활성화 시 상대적으로 많은 화학반응열이 발생하게 되므로 중심부와 많은 온도차를 나타내게 된다. 모노리스 입구 전체에 고농도의 촉매를 분포시킨 case 3-II의 경우도 높은 유속 균일도 및 FAR에도 불구하고 활성화 이후에 두 모노리스 간의 평균 온도 차이가 약 100K 정도가 됨을 보이고 있음을 볼 수 있다. 결국 가변 셀밀도법에 비균일 농도분포를 통해 Fig. 14에서 보듯이 활성화 성능을 개선할 수 있지만 각 모노리스의 유입유량이 균일하지 못하면 두 모노리스 입구에서의 화학적 발열량의 차이가 두 모노리스 간의 온도차를 유발하여 큰 열응력이 발생할 수 있을 것이다.

4. 결론

본 연구에서는 열 및 유동해석과 화학적 거동 해석을 통합적으로 수행할 수 있는 수치적 방법으로부터의 결과를 기존의 실험결과와 비교하여 그 성능을 평가하였으며 이를 이용하여 기존의 횡 방향 가변 셀밀도법을 2.0 liter 가솔린 엔진에 장착한 차체밀 촉매변환기에 적용하여 FTP-75 주행모드의 초기 워업 시 모노리스의 열 및 화학적

거동에 미치는 영향에 대해서 연구하였다.

해석 및 검증결과, 워업 초기의 모노리스 내의 온도구배는 유속분포에 지배적이므로 기존의 일차원 단일관 모델보다 배출물(CO,HC,NO) 농도에 측에 있어서 본 연구에서 사용한 통합적 해석방법이 실험치에 근접한 결과를 나타낼 수 있음을 확인하였으며 횡방향 가변 셀 밀도법을 이용하여 중앙부에서 외곽부로 점차 낮은 셀밀도의 모노리스를 배열시킨 5가지 모노리스의 셀밀도 조합에 대한 수치해석을 수행하였다. 해석 결과, 본 연구에서 고려한 모든 가변 셀밀도 조합에서 62cpsc의 균일밀도의 경우보다 높은 변환효율과 낮은 압력강하를 얻을 수 있었으며 그 중에서 93cpsc/62cpsc의 2종 셀밀도 조합이 가장 높은 변환효율을 나타내었으며 62cpsc의 균일밀도의 경우에 비하여 32%의 압력손실을 저감할 수 있었다.

해석결과, 본 연구에서 고려한 5가지 경우의 셀밀도 조합을 해석한 결과 외곽부의 셀밀도는 중앙부에 위치한 셀밀도의 67%인 경우(93cpsc/62cpsc)가 활성화 기간 중 전체 모노리스로의 균형 잡힌 유입유량을 얻을 수 있어 외곽의 모노리스로의 배기가스의 편중된 흐름으로 인한 활성화 성능의 저하를 막을 수 있었다. 중앙부와 외곽부의 셀밀도가 크면 셀밀도가 낮은 외곽부로 유입유량이 집중되어 가스의 짧은 잔류시간 및 외부로의 열손실로 인하여 변환효율의 저하를 가져오므로 각 모노리스로의 고른 유량분배가 이루어져 전체 모노리스에서 고른 공간속도를 얻을 수 있도록 셀밀도 조합이 이루어져야 한다.

또한 저온시동 시의 빠른 촉매 활성화를 얻기 위해 모노리스 유입부에 고농도의 촉매를 분포시킨 경우 활성화 성능을 향상시킬 수 있지만 각 모노리스로 유입되는 유량 차이에 따른 모노리스 입구에서의 불균일한 화학반응열로 인하여 FAR=0.77인 비교적 균일한 유속분포의 경우에도 활성화이후 두 모노리스간의 온도차이가 100K 이상이었다. 따라서 횡방향 가변 셀밀도로 구성된 모노리스에 불균일 농도분포를 적용 시킬 경우에는 셀 밀도가 다른 모노리스의 두 영역간의 온도 차이로 인한 열응력을 신중히 고려해야 한다.

참고문헌

- (1) Siemund, S., Leclerc, J. P., Schweich, D.,

- Prigent, M. and Castagna, F., 1996, "Three-Way Monolithic Converter: Simulations Versus Experiments," *Chemical Engineering Science*, Vol. 51, No. 15, pp.3709~3720.
- (2) Zygourakis, K., 1989, "Transient Operation of Monolith Catalytic Converters: A Two-dimensional Reactor Model and the Effects of Radially Non-uniform Flow Distributions," *Chemical Engineering Science*, Vol. 44, pp. 2075~2086.
- (3) Chen, D. K. S., Oh, S. H., Bissett, E. J. and Van Ostrom, D. L., 1988, "A Three-dimensional Model for the Analysis of Transient Thermal and Conversion Characteristics of Monolithic Catalytic Converters," SAE Paper No.880282.
- (4) Kim, J-Y, 1993, "Flow Distribution and Pressure Drop in Diffuser-Monolith Flow: Implications to the Automotive Catalytic Converter Design," Ph.D Thesis, Wayne State University, Detroit, Michigan.
- (5) Jeong, S-J and Kim, T-H, 1997, "CFD Investigation of the 3-dimensional Unsteady Flow in the Catalytic Converter," SAE Paper 971025.
- (6) Bella, G., Rocco, V. and Maggiore, M., 1991, "A Study of Inlet Flow Distortion Effects on Automotive Catalytic Converters," *J. of Engineering for Gas Turbines and Power*, Vol. 113, pp. 419-426.
- (7) Jeong, S-J and Kim, W. S., 1998, "A Numerical Approach to Investigate Transient Thermal and Conversion Characteristics of Automotive Catalytic Converter," SAE Paper 980881.
- (8) 정수진, 김우승, 1999, "자동차용 촉매변환기의 최적설계를 위한 열 및 유동특성에 대한 수치적 연구," 대한기계학회논문집, B권, 제23권 제17호, pp.841~855.
- (9) Jeong Y. Kim and Seha Son, 1999, "Improved Flow Efficiency of a Catalytic Converter Using the Concept of Radially Variable Cell Density-Part I," SAE Paper 1999-01-0769.
- (10) Paul Day J. and Louis S. Socha, Jr., 1991, "The Design of Automotive Catalyst Supports for Improved Pressure Drop and Conversion Efficiency," SAE Paper No.910371.
- (11) Khalfi A., Marcuccilli F., Brillard A. and Gilot P., 1996, "Behaviour of Three-Way Catalysts: Comparison between High-cell Density Catalytic Converters and Conventional Ones," *Bull. Soc. Chim. Belg.* Vol. 105, No. 9, pp. 519~526.
- (12) Subramanian, B. and Varma, A., 1985, "Reaction Kinetics on a Commercial Three-Way Catalyst: the CO-NO-O₂-H₂O System," *Ind. Engng Chem. Prod. Res. Dev.*, Vol. 24, pp. 512~516.
- (13) Kirchner T. and Eigenberger G., 1997, "On the Dynamic Behaviour of Automotive Catalysts," *Catalysis Today*, Vol. 38, pp. 3~12.
- (14) Rich, B.R., 1953, "An Investigation of Heat Transfer from an Inclined Flat Plate in Free Convection," *Trans. ASME*, Vol. 75, pp. 489~499.
- (15) Dubien, C., Schweich, D., Mabilon, G., Martin, B. and Prigent, M., 1997, "Three-Way Catalytic Converter Modeling: Fast and Slow Oxidizing Hydrocarbons, Inhibiting Species and Steam Reforming Reaction," *Chemical Engineering Science*, Vol. 53, No. 3, pp. 471~ 481.
- (16) STAR-CD Ver. 3.0 Manual, 1997, Computational Fluid Dynamics Ltd.
- (17) Baratti, R., Wu, Hua, Massimo Morbidelli and Arvind Varma, 1993, "Optimal Catalyst Activity Profiles in Pellets- X. The Role of Catalyst Loading", *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 48, No. 10, pp. 1869~1881.
- (18) 馬場直樹, 大澤克幸, 1996, "觸媒暖機科程における昇温及び浄化舉動の解析," 自動車技術會論文集, Vol. 27, No. 3, pp. 59~ 65.
- (19) Tronci, S., Baratti, R., and Gavriilidis, A., 1999, "Catalytic Converter Design for Minimisation of Cold-Start Emissions", *Chem. Eng. Comm.*, Vol. 173, pp.53~77.
- (20) Yakhot, V. and Orszag, S. A., 1986, "Renormalization Group Analysis of Turbulence, I. Basic Theory," *J. of Sci. Comput.*, Vol.1, pp.1-51.
- (21) Voltz, S. E., Morgan, C. R., Lieberman D. and Jacob, S. M., 1973, "Kinetic Study of Carbon Monoxide and Propylene Oxidation on Platinum Catalysts," *Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Dev.*, Vol. 12, No. 4, pp. 294~301.