

수소 연료의 연소조건 변화에 따른 NOx 배출 특성에 관한 연구

김종현[†] · 이근오* · 이창언

인하대학교 기계공학과 · *서울산업대학교 안전공학과
(2001. 10. 5. 접수 / 2001. 12. 21. 채택)

A Study on the NOx Emission Characteristics in Parametrically Varied Laminar Hydrogen-Air Coflow Flames

Jong-Hyun Kim[†] · Keun-Oh Lee* · Chang-Eon Lee

Department of Mechanical Engineering, Inha University

*Department of Safety Engineering, Seoul National University of Technology

(Received October 5, 2001 / Accepted December 21, 2001)

Abstract : The NOx emission characteristics of jet flames fueled with H₂ was 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 NOx(EINOx) were measured by chemiluminescent method and calculated by simulation using detailed chemistry. The results show that the numerical results represent well the trends of EINOx experimentally observed. EINOx of H₂ flame steeply increase at small equivalence ratio, gently increase and steady at more than equivalence ratio is 4.0. EINOx trends of H₂ flame can be describe in function of residence time in the high-temperature region weighted by the maximum flame temperature.

Key Words : jet flame, thermal NOx, NOx Emission Index(EINOx)

1. 서 론

각종 연소기로부터 발생되는 NOx는 대기중의 물과 반응하여 산성비를 형성하며, 이 산성비는 전력용 설비의 절연재료에 접촉하여 표면 절연 파괴 현상인 트래킹 파괴¹⁾를 일으켜 화재의 원인이 되고 있다. 또한 NOx 배출에 따른 환경 문제가 심각하게 대두됨에 따라 그 발생원에서의 NOx 저감을 위한 연구가 중요하게 되었다. 가스 연소에서의 NOx 생성 과정은 유동, 전열, 혼합 등의 물리적 현상과 반응 등의 화학적 현상, 그리고 이들의 복합적인 상호작용에 민감하게 영향을 받는다. 따라서 가스용 연소기에서 NOx 저감을 달성하기 위해서는 위에 언급한 다양한 인자들에 대한 종합적인 정보를 바탕으로 NOx 배출특성을 면밀히 검토할 필요가 있다.

분류 화염에서의 NOx 생성 특성에 관한 연구를

살펴보면, Turns²⁾ 등은 C₃H₈, C₂H₄, CH₄ 연료에 대한 난류 분류 화염에서 EINOx를 조사한 결과, 일정한 열방출률에서 부분 예혼합은 복사열손실과 체류시간을 변화시켜 EINOx를 증가 또는 감소시킬 수 있음을 보고한 바 있다. Rokke³⁾ 등은 난류 C₃H₈ 화염에서 부분 예혼합이 증가함에 따라 EINOx값이 더 높아짐을 보고하였다. 그리고 Gore⁴⁾ 등은 층류 부분에 혼합 CH₄ 화염에서 EINOx와 주요 화학종 농도분포를 연구한 결과 NOx가 적게 나오는 최적 당량비가 있음을 중간 탄화수소 화학종들의 변화에 기인한다고 추측하였다. Kim⁵⁾ 등은 C₂H₆ 분류화염에서 실험을 통하여 NOx가 적게 나오는 특정 당량비가 있음을 예혼합 반응대의 Prompt NOx 생성과 확산 반응대의 Thermal NOx 생성의 상호절충에 의한 것으로 추측하였다.

또한, Smooke⁶⁾ 등은 CH₄ 확산 화염에서의 수치 해석 연구를 통해 NOx 발생은 Prompt NO가 지배적임을 지적한 바 있으나, 이는 계산시간을 단축하기 위해 N₂를 희석시켜 화염을 작게 한 연구결과로 일

[†]To whom correspondence should be addressed.
kimjh@duck.snut.ac.kr

반적인 경향이라고 보기는 어렵다.

한편, H₂ 분류 화염에서의 NO_x 생성 특성에 관한 연구들을 살펴보면, Driscoll⁷⁾ 등은 난류 H₂ 화염에서 부분 예혼합의 증가는 체류시간을 감소시켜 EINO_x가 크게 감소됨을 알아내었다. 또한 Gabriel⁸⁾ 등은 Ar과 He을 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 종합적이며 일반적인 연구는 부족한 형편이다.

본 연구는 실용 연소기의 화염형태와 유사한 H₂ 층류 분류 화염을 대상으로 하였으며, 당량비, 연료 유량 및 노즐직경 변화에 따른 EINO_x의 경향을 실험을 통하여 조사하였다. 또한 수치계산을 이용하여 그 원인을 분석하여 연소방식 및 연소조건에 따른 EINO_x 경향에 대하여 일반적인 결론을 도출하였다.

2. 실험 방법

본 연구의 실험장치를 Fig. 1에 나타낸다. 실험장치는 혼합기(H₂+Air) 노즐 및 노즐과 동일한 축방향으로 설치된 직경 50mm의 주위류 노즐로 구성된다. 본 실험은 연소기에서 형성되는 층류 분류화염을 대상으로 실시하였다. 실험 및 계산에서의 연료 노즐직경과 유량조건을 Table 1에 나타낸다. 실험조건으로는 H₂ 화염에 대해 노즐직경일정 조건하에서 혼합기 유량 변화에 따른 경우 및 유량 일정조건하에서 노즐직경을 변화시킨 경우로 분류하여 실시하

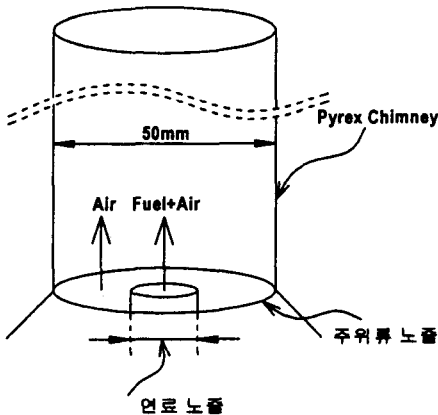


Fig. 1. Schematic diagram of coflow burner

Table 1. Experimental condition and Boundary condition at nozzle outlet

연료 노즐(H ₂ +Air)		
노즐 직경	연료 유량	당량비
3.7mm	1.86L/min	0.9
	2.07L/min	1.0
	2.29L/min	1.5
3.0mm	1.86L/min	2.5
3.4mm		4.0
3.7mm		6.0
		8.0

였으며, 모든 조건에서 주위류 유량은 46l/min으로 일정하게 하였다. 연소가스 샘플링 위치는 반경방향 NO_x 농도의 상대변화가 ±2% 이내로 되는 충분한 하류지역을 대상으로 하였다. 또한 분석은 화학발광법을 이용한 질소산화물 분석기(300-CLD)를 이용하여 측정하였다. H₂ 화염의 NO_x 배출지수⁹⁾는 식(1)을 이용하여 계산하였다.

$$EINO_x = 0.001(MW_{NO_x}/MW_H) \times \chi_{NO_x}((1 + (4.76/\Phi_0))/2) \text{ (g/kg)} \quad (1)$$

3. 수치 계산 방법

본 연구의 수치계산에는 층류 분류화염에 대해 계산이 가능한 CLESALF Code⁹⁾를 수정하여 사용하였다. 열역학적 물성치 및 화학종의 생성물은 CHEMKIN-II Package¹⁰⁾로, 전달 물성치는 TRANFIT Package¹¹⁾를 이용하여 계산하였다. 지배방정식은 (2)~(5)식으로 나타내었으며, 그 외 계산방법에 대한 상세한 내용은 참고문헌¹²⁾와 동일한 방식으로 수행하였다.

운동량 보존식

$$\rho u \frac{\partial u}{\partial x} - \frac{\rho u}{M} \left(\xi \frac{dM}{dx} - \frac{dM_1}{dx} \right) \frac{\partial u}{\partial \xi} + \frac{dp}{dx} = \frac{\rho u}{M^2} \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\rho u \mu r^2 \frac{\partial u}{\partial \xi} \right) + g(\rho_i - \rho) \quad (2)$$

화학종 보존식

$$\rho u \frac{\partial Y_k}{\partial x} - \frac{\rho u}{M} \left(\xi \frac{dM}{dx} - \frac{dM_1}{dx} \right) \frac{\partial Y_k}{\partial \xi} = \dot{\omega}_k W_k - \frac{\rho u}{M} \frac{\partial}{\partial \xi} (r \rho Y_k V_k) \quad (k=1, \dots, K_p) \quad (3)$$

에너지 보존식

$$\begin{aligned} & \rho u c_p \frac{\partial T}{\partial x} - \frac{\rho u c_p}{M} \left(\xi \frac{dM}{dx} - \frac{dM_1}{dx} \right) \frac{\partial T}{\partial \xi} \\ &= \frac{\rho u}{M^2} \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\rho u \lambda r^2 \frac{\partial T}{\partial \xi} \right) - \sum_{k=1}^{K_s} \dot{\omega}_k W_k h_k \\ & \quad - \frac{\rho^2 u r}{M} \sum_{k=1}^{K_s} Y_k V_k c_{p,k} \frac{\partial T}{\partial \xi} \end{aligned} \quad (4)$$

상태방정식

$$p = \frac{\rho R T}{W} \quad (5)$$

계산에 이용된 반응기구는 11개 화학종과 23개 반응식으로 구성된 상세 반응기구를 이용하였으며, H₂ 화염에서 발생하는 NO_x는 Thermal NO_x만을 고려하였다.

본 연구에 이용된 코드 및 계산방법은 기존 CH₄ 분류화염의 NO_x 계산에 적용되어 검증된 바 있으므로 본 코드를 이용하여 H₂ 화염의 NO_x 배출특성에 대한 결과는 충분한 타당성을 갖는다. 따라서, 이후에는 H₂ 화염의 NO_x 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 H₂ 분류화염에서의 EINO_x를 도시한 것으로, Fig. (a)는 동일 직경의 노즐에서 연료유량 및 당량비를 변화시킨 경우이며, Fig. (b)는 동일 연료유량에 대해 노즐직경 및 당량비를 변화시킨 경우이다. 우선, 당량비 변화에 따른 EINO_x 경향은 모든 조건에서 당량비 4.0까지는 급격히 증가하며, 그 이후에서는 서서히 증가하여 거의 일정한 값에 도달함을 알 수 있다. 그리고, 연료유량이 동일한 경우에는 연료 노즐직경이 변하여도 EINO_x에는 차이가 없음을 볼 수 있다.

Fig. 3은 Fig. 2의 H₂ 연료유량 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 이 값보다 높은 경우에는 연료유량의 증가에 따라 EINO_x도 증가함을 알 수 있다. 위 실험결과에서, 연료유량, 노즐직경 등의 변화에 따

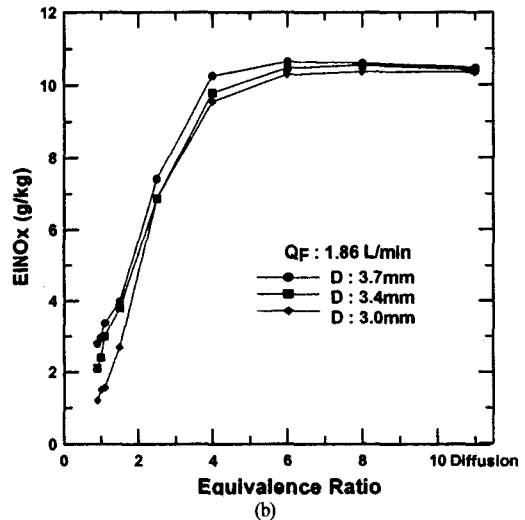
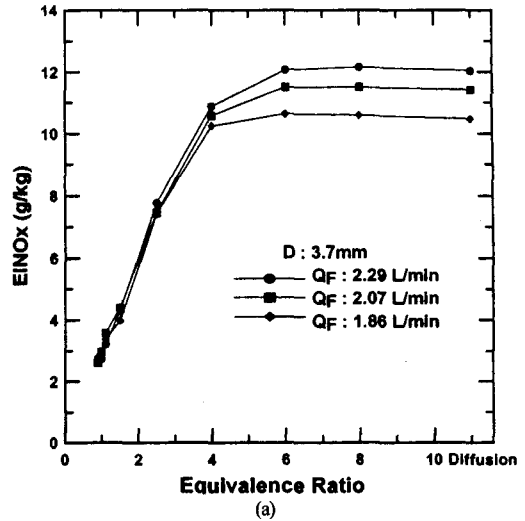


Fig. 2. EINO_x with (a) the variation of the fuel flow rate of and (b) the variation of the diameter of inner fuel nozzle of H₂

른 EINO_x 경향을 살펴보면, 그 원인을 실험결과만을 이용하여 분석하기에는 불충분하므로 다음에 기술하는 수치계산 결과를 이용하여 그 원인들을 분석하였다.

4.2. 수치해석 결과

Fig. 4는 Fig. 2의 실험결과에 대한 수치해석 결과를 나타낸다. 수치해석 결과는 실험 결과에 비해 정량적으로는 약 3-4배 높게 예측되고 있으나, 당량비, 연료유량, 노즐 직경 등의 변화에 따른 EINO_x 경향은 실험에서 관측되는 EINO_x 경향과 잘 일치하고

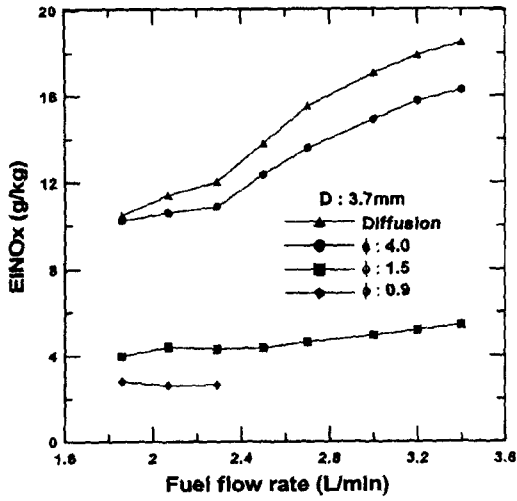


Fig. 3. EINOx with the variation of the fuel flow rate of H₂

있음을 알 수 있다.

Fig. 5는 Fig. 2(a) 및 Fig. 4(a)의 조건 중 연료유량 2.07L/min에 대하여 N₂를 15% 희석한 경우의 실험 및 수치계산 결과를 나타낸다. 그림에서 수치계산 결과는 점선으로 나타내었으며, 실험결과는 실선으로 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 N₂ 희석으로 인한 화염온도의 감소는 두 경우 모두 EINOx값을 크게 감소시키는 것을 알 수 있다.

또한 수치계산 결과의 EINOx가 더 큰 폭의 감소 경향을 나타낸다. 이는 본 계산에서 고려하지 못한 복사효과의 영향 때문으로 예측된다. 본 연구에서 실험결과와 수치계산 결과의 정량적인 차이는 다음과 같다.

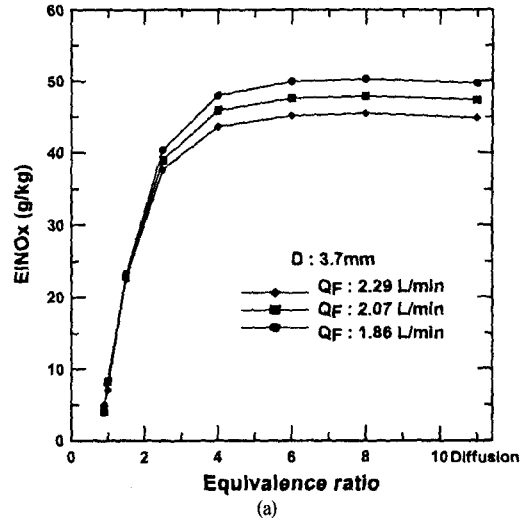
1. 계산에서 복사효과를 고려하지 않은 점.
2. NOx 반응기구의 정량적 예측성능의 한계
3. Parabolic 방정식을 이용한 수치해법에서 노즐 근처의 인위적인 착화.

그러나, 이는 본 계산의 모든 조건에 공통적으로 적용된 것으로 본 연구에서 논의하고자 하는 조건에서의 EINOx 경향에는 큰 영향을 미치지 않을 것으로 판단된다.

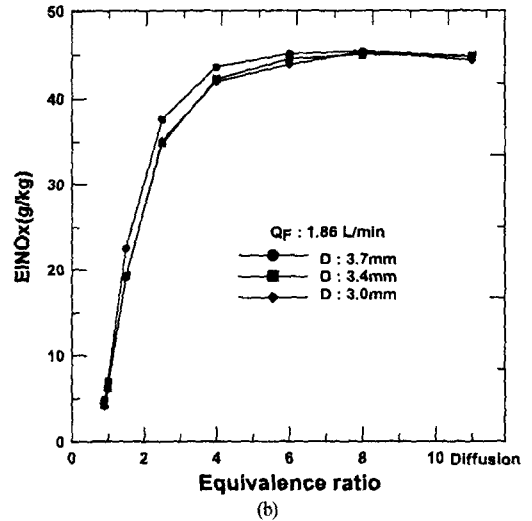
따라서, H₂ 화염의 경우 수치계산 결과를 이용하여 실험결과에서 분석할 수 없는 여러 가지 EINOx 특성을 분석하는 것은 충분히 의미가 있다고 할 수 있다.

Fig. 6 및 Fig. 7은 H₂ 화염에서의 EINOx 경향을 분석하기 위해 도시한 것이다.

Fig. 6은 H₂ 분류화염에서 동일 직경의 노즐에서



(a)



(b)

Fig. 4. EINOx with the variation of the fuel flow rate of H₂

연료유량 및 당량비를 변화시킨 화염들(Fig. 2의 실험결과, Fig. 4의 수치계산 결과)에 대한 중심축 상에서의 최고온도 및 1850K 이상의 영역을 통과하는데 소요시간, 즉 고온 체류 시간을 나타낸 것이다. 이 그림을 Fig. 2의 실험결과와 Fig. 4의 수치해석 결과를 비교해 보면, H₂ 분류화염에서의 당량비 변화 및 유량 변화에 따른 EINOx 경향은 고온 체류 시간에 최고온도를 곱한 경향과 일치함을 알 수 있다. 따라서 H₂ 화염에서의 EINOx 경향은 고온 체류 시간에 화염온도를 가중(weighting)해준 함수 형태로 나타낼 수 있다. Fig. 7은 Fig. 4(a)의 화염중 연료유량이 2.07L/min이고, 당량비 4.0인 화염의 x=2cm 단

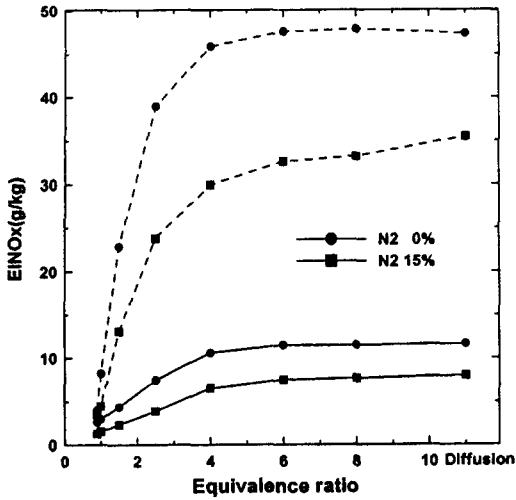


Fig. 5. EINO_x with the variation of the N₂ dilution of H₂

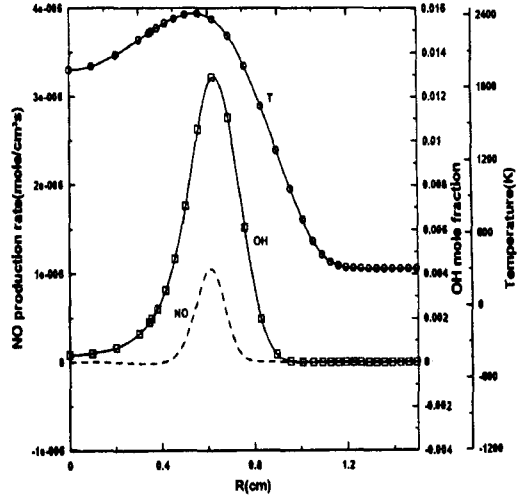


Fig. 7. Radial profile of H₂ flame ($\phi=4.0$, $X=2\text{cm}$)

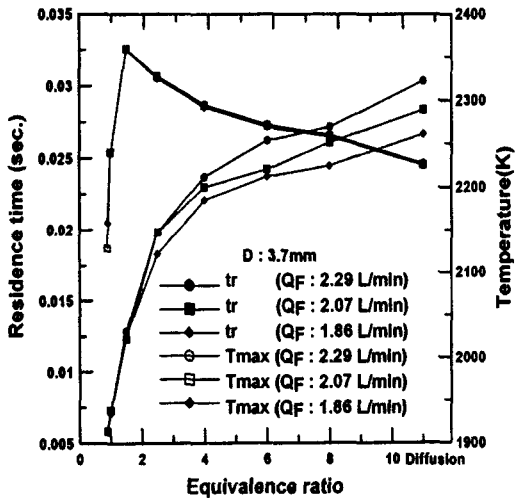


Fig. 6. The residence time and maximum temperature on center line with the variation of the fuel flow rate of H₂

면에서의 NO 생성과 관련성이 높은 온도 및 OH 라디칼 농도를 도시한 것이다. 그림에서 NO 생성물의 최고치는 화염에서 온도 최고치 보다 다소 외측에 분포한다. 이 NO 발생영역은 가스 온도가 1850K 이상인 동시에 OH 농도가 어느 정도 존재하는 영역과 일치함을 알 수 있다. 즉 화염대 내부의 가스온도가 1850K 이상이 되어도 OH가 존재하지 않기 때문에 NO가 생성되지 않음을 알 수 있다. 이상의 결과로부터 화염에서 NO 생성 영역이 존재하는 경우에는 일정 농도의 OH 농도 분포를 이용하는 것이 적합함을 알 수 있다.

5. 결론

총류 동축 분류 H₂ 화염을 대상으로 실험 및 수치계산을 통해 당량비, 노즐직경 및 연료유량 변화에 따른 NO_x 배출특성을 검토한 결과, 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 실험과 수치계산 결과에서 EINO_x는 정량적으로 차이를 보이나 당량비, 연료유량 및 노즐직경 변화에 따른 EINO_x의 경향은 잘 일치함을 알 수 있다.
- 2) H₂ 화염의 EINO_x는 당량비가 작은 영역에서 급격히 증가하며, 당량비 4.0 이상에서는 완만히 증가한 후 일정해진다. 또, EINO_x는 당량비가 작은 경우에는 유량 증가에 무관하나 높은 경우 유량에 비례하여 증가하며, 연료노즐 직경 변화에는 차이가 없음을 알 수 있다.
- 3) H₂ 화염에서 NO 생성 영역을 나타내는 경우에는 고온영역에서 일정 농도의 OH 농도 분포를 이용하는 것이 적합함을 알 수 있다.
- 4) H₂ 화염의 EINO_x 경향은 고온 체류시간에 화염온도를 가중(Weighting)해 준 함수 형태로 나타낼 수 있는 가능성을 확인하였다.

참고문헌

- 1) Lim Jang Seob, Lee Jin, Lee Jeung Sik, "Accelerated Aging Test of Tracking Using the Dust & Fog Method," 한국전기전자재료학회 추계학술대회 논문집, 1996.

- 2) S. R. Turns, F. H. Myhr, R. V. Bandaru and E. R. Maund, "Oxide of Nitrogen Emissions from Turbulent Jet Flames: Part II-Fuel Dilution and Partial Premixing Effect," *Combustion and Flame*, Vol. 93, 255, 1993.
- 3) N. A. Rokke, J. E. Hustad. and O. K. Sonju, "A study of Partially Premixed Unconfined Propane Flames," *Combustion and Flame*, Vol. 97, 88, 1994.
- 4) 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.
- 5) Tae Kwon Kim, B. J. Alder, N. M. Laurendeau and J. P. Gore, "Exhaust and In-Situ Measurements of Nitric Oxide for Laminar Partially Premixed C₂H₆-Air Flames : Effect of Premixing Level at Constant Fuel Flowrate," *Combust. Sci. and Tech.*, Vols. 110~111, pp. 361~378, 1995.
- 6) 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," *24th Symposium (Internat.) on Combustion/The Combustion Institute*, pp. 813~821, 1992.
- 7) 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.
- 8) 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, pp. 525~534, 2000.
- 9) 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 SAND 98-0478*, 1993.
- 10) 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 SAND 89-8009B*, 1989.
- 11) 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.
- 12) 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.