

메탄/공기 대향류 예혼합화염의 NO 발생특성에 관한 수치해석

조은성* · 정석호**†

A Numerical Analysis of the NO Emission Characteristics in CH₄/Air Counterflow Premix Flame

Eun-Seong Cho* and Suk Ho Chung**†

ABSTRACT

Lean premix combustion is a best method in low NO_x gas turbine combustor and we must know the characteristics of NO emission in high temperature and pressure condition in premix flame. Numerical analysis was performed to investigate the NO emission characteristics by adopting a counterflow as a model problem using detailed chemical kinetics. Methane (CH₄) was used as a test fuel which is the main fuel of natural gas. The tested parameters were stretch rate, equivalence ratio, initial temperature, and pressure in premix flame. Results showed that NO emission was high in low stretch rate, near stoichiometric equivalence ratio, high initial temperature, and high pressure. Also, the pressure effect was sensitive in high temperature condition.

Key Words : Counterflow Premix Flame (대향류예혼합화염), Thermal NO (열적질소산화물), Prompt NO (급속질소산화물), EINO (NO 배출지수)

1. 서론

가스터빈 연소기는 압축기로부터 공급되는 고압의 공기와 연료를 반응시켜 얻은 고온의 연소가스를 이용하여 터빈을 구동하는 가스터빈 시스템의 핵심부품이다. 마이크로 가스터빈은 약 20~300kW의 전력을 생산할 수 있는 것을 말하며, 현대산업사회의 고도화와 생활수준 향상에 따라 전력수요를 대체할 분산형 전원으로 개발이 활발히 진행되고 있다. 그러나 연소시스템의 사용에 따라 공해물질 배출의 증가로 환경문제를 초래하게 되므로, 이로 인해 저공해 연소를 실현하기 위한 신 연소기술 개발에 대한 관심이 높아지고 있다. 가스터빈 연소기는 고압운전을 하며 최근에는 효율향상을 위하여 고온공기를 사용하고 있어 이러한 운전조건에서는 질소산화물(NO_x)의

과다 발생이 특히 문제가 되고있다. 연소과정에서 발생하는 질소산화물은 NO 및 NO₂로 통상 NO_x라 총칭하며, 그 생성기구에 따라 분류하면 연소공기중의 질소분자가 고온상태에서 산화되어 발생하는 thermal NO_x와 탄화수소계 연료에서 화염면 및 그 근방에서 급격한 연소로 생성되는 prompt NO_x로 나눌 수 있다. 또한 가스터빈 연소기와 같은 다량의 공기를 사용하는 경우 NO₂도 발생할 수 있다[1,2].

대향류를 이용한 NO_x 발생특성 연구는 확산 및 예혼합연소에 대한 연구[3], 고온 확산연소에서의 압력영향 등에 관한 연구[4], 스팀첨가에 의한 특성연구[5] 등이 있으며, 본 연구에서는 저 NO_x 가스터빈 연소기의 대표적인 예인 희박예혼합(lean premix) 연소에 대한 기초연구로서 상대적으로 자료가 부족한 고온·고압의 예혼합화염에서의 NO_x 발생특성을 연구하기 위하여 고온(864K)의 대향류 예혼합화염에서 스트레치율(난류강도), 당량비, 압력 및 초기온도에 대한 영향을 살펴보았다.

* 서울대학교 기계항공공학부

** 서울대학교 기계항공공학부 대학원

† 연락처, E-mail : shchung@snu.ac.kr

2. 지배방정식 및 수치해석

대항류 화염은 준 일차원의 화염으로 생각되어, 일차원화염모델을 구축해 해석이나 수치계산에 의한 예측과 비교가 용이하여 실험과 수치계산의 양쪽측면으로부터 현상을 해석하는 것이 가능하다. 또한, 화염신장의 영향을 조사하는 것이 가능하여 난류화염의 구조해명의 기초 데이터를 얻는 것이 기대되어진다. 난류화염은 매우 복잡한 유동장을 형성하나, 화염 일부를 국소적으로 보면 스트레치를 받는 층류화염으로 생각할 수 있다. 이런 조건이 모여진 것이 난류화염이라고 한다면 다양한 오더의 스트레치를 받는 층류화염을 상세히 조사하는 것에 의해 난류화염의 구조해명에 적용 가능하다.

본 연구에서는 OPPDIF[6] 코드를 사용하였으며, 질량, 운동량, 에너지, 화학종 방정식 및 상태방정식과 경계 조건은 다음과 같다.

정상상태에서 원통좌표계를 이용한 연속방정식은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{\partial}{\partial x}(\rho u) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(\rho vr) = 0 \quad (1)$$

여기서 u 및 v 는 축방향 및 반경방향의 속도이며, ρ 는 혼합기체의 밀도이다. 축방향 속도를 비롯한 온도 및 모든 물리량이 x 만의 함수라는 가정에 따라 연속방정식은 다음과 같이 표현될 수 있다.

$$G(x) = \frac{dF(x)}{dx} \quad (2)$$

여기서 $F(x) = \rho u/2$ 는 축방향 질량유속 성분을 나타내고 $G(x) = -\rho v/r$ 는 반경방향 질량유속 성분을 나타낸다.

반경방향의 운동량 방정식은 다음과 같다.

$$H - 2 \frac{d}{dx} \left(\frac{FG}{\rho} \right) + \frac{3G^2}{\rho} + \frac{d}{dx} \left[\mu \frac{d}{dx} \left(\frac{G}{\rho} \right) \right] = 0 \quad (3)$$

여기서 μ 는 점성계수이며, $H = (1/\rho)(\partial p / \partial r)$ 는 반경방향 압력구배의 고유치이다.

에너지 방정식은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\rho u \frac{dT}{dx} - \frac{1}{c_p} \frac{d}{dx} \left(\lambda \frac{dT}{dy} \right) + \frac{\rho}{c} \sum_k c_{pk} Y_k V_k \frac{dT}{dx} + \frac{1}{c_p} \sum_k h_k \dot{\omega}_k = 0 \quad (4)$$

여기서 T , c_p , λ 는 온도, 혼합기체의 정압비열 및 열전도계수이다. c_{pk} , Y_k , h_k , $\dot{\omega}_k$ 는 k 번째 종의 정압비열, 질량분율, 생성엔탈피 화학종 생성율을 각각 나타낸다.

화학종의 보존방정식은 다음과 같다.

$$\rho u \frac{dY_k}{dx} + \frac{d}{dx} (\rho Y_k V_k) - \dot{\omega}_k W_k = 0, \quad k = 1, K \quad (5)$$

여기서 W_k 는 k 번째 종의 분자량이며, V_k 는 화학종 k 의 확산속도로서 다음과 같다.

$$V_k = \frac{1}{X_k W} \sum_{j=1}^K W_j D_{kj} \frac{dX_j}{dx} - \frac{D_k^T}{\rho Y_k} \frac{1}{T} \frac{dT}{dx} \quad (6)$$

여기서 D_{kj} 및 D_k^T 는 다성분 확산계수 및 열 확산계수이며, X_k 는 화학종 k 의 몰분율, K 는 혼합기체에 존재하는 가스종의 수이다. \bar{W} 는 혼합기체의 평균분자량을 나타낸다.

상태방정식은 다음과 같다.

$$p = \frac{\rho RT}{W} \quad (7)$$

여기서 R 는 가스상수이다.

각각의 지배방정식에 대한 경계조건을 노즐의 연료 (F)와 산화제 (O)에서 보면 다음과 같다.

$$x=0 : F = \frac{\rho_F u_F}{2}, \quad G=0, \quad T = T_F, \quad \rho u Y_k + \rho Y_k V_k = (\rho u Y_k)_F \quad (8)$$

$$x=L : F = \frac{\rho_O u_O}{2}, \quad G=0, \quad T = T_O, \quad \rho u Y_k + \rho Y_k V_k = (\rho u Y_k)_O \quad (9)$$

화학 반응항과 열역학적 물성치의 계산에는 CHEMKIN-III[7]를, 전달 물성치는 Transport Package[8]를 이용하여 계산하였다. 본 연구에서 사용한 화학 반응은 NO 반응을 포함한 53개의 화학종과 325개의 반응단계로 이루어진 GRI 3.0 메커니즘[9]을 이용하였다.

3. 계산결과 및 검토

계산은 Fig 1.에 나타낸 것과 같은 대향류 형태에서 매탄/공기 예혼합 화염의 NO 발생특성을 알아보았다. 가스터빈의 연소기의 입구조건인 864K의 고온에서 스트레치율 (난류강도) 증가에 따른 특성을 확인하여 보았으며, 동일 스트레치율에서 압력의 변화, 당량비의 변화에 대하여 질소산화물의 발생특성을 확인하여 보았다. 또한, 초기온도 변화에 대한 영향도 계산하여 보았다.

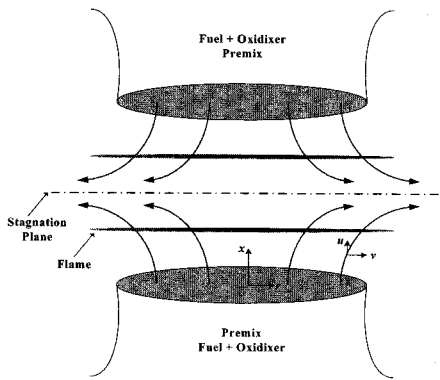


Fig. 1 Counterflow premix flame

3.1 화염구조 및 NO 발생기구 분류

Figure 2는 계산조건에서의 온도분포 및 주요 화학종들의 발생분포를 나타낸 것이다. 양쪽 입구조건에서 동일 당량비의 예혼합기를 공급하기 때문에 온도 및 화학종 분포는 대칭구조를 가지고 있다. NO는 최대 온도가 나타나는 지점에서 최대 발생이 나타남을 알 수 있다.

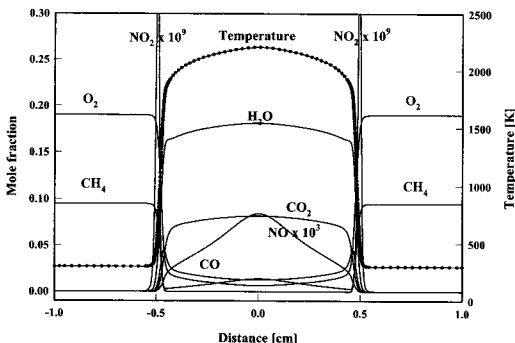
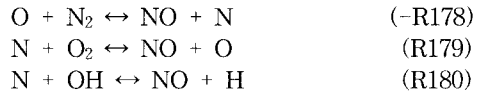


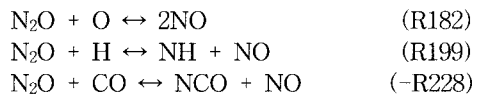
Fig. 2 Temperature and species distribution in counterflow premix flame

GRI 3.0 메커니즘의 경우 총 40 step의 NO 생성, 소멸 반응이 있어 전 반응경로를 상세하게 묘사할 수 있는데, 각각의 메커니즘을 Nishioka가 제안한 방법[3]에 의하여 분류하면 thermal NO와 Prompt NO, 또한, N₂O 및 NO₂ 경우 NO 반응 등으로 나눌 수 있으며 반응식은 아래와 같다. 반응식의 번호는 GRI 3.0 메커니즘의 반응번호이다.

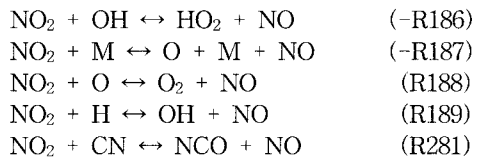
a) Thermal NO (Zeldovich) Mechanism



b) N₂O Mechanism



c) NO₂ Mechanism



d) Prompt NO Mechanism - 나머지 메커니즘

연소중에 발생되는 질소산화물을 실험적으로는 각각의 메커니즘별 영향을 구분하기는 어려우나 수치해석적으로는 각각의 발생특성을 구할 수 있으며 이것은 수치해석의 장점이라고 할 수 있다.

상기 분류방법을 이용하여 각각의 메커니즘별 발생특성을 확인하기 위하여 Nishioka[3] 등이 수행한 기존의 방법은 Full 메커니즘을 이용하여 NO의 총 생성량을 구하고 Thermal NO 반응만을 포함한 수정 반응기구를 이용하여 Thermal NO 발생량을 계산하여 그 차이를 이용 Prompt NO 발생량을 구하는 계산방법을 사용하였으나, 이것은 Ju 등의 논문[10]에서 각각의 메커니즘의 상호작용을 무시하는 것으로 지적되었다. 그러므로 본 연구에서는 Full 메커니즘을 이용한 한번의 계산결과를 이용, 후처리 프로그램을 사용하여 각각의 메커니즘별 발생량을 계산하였다.

3.2 신장률(Stretch rate)에 따른 특성

연소상태의 유동조건을 나타내기 위해 스트레치율을 정의하는데 양쪽 출구의 속도 및 밀도 조건에 의해 식 (10)을 이용하여 구하였다[11]. 식의 첨자 *o*, *f* 는 각각 산화제와 연료를 나타낸다.

본 연구에서는 같은 당량비의 예혼합기를 동일속도로 양쪽에서 분사하였고 버너간격(L)은 2 cm로 계산하였다. 또한, 배기배출물의 값을 구하기 위하여 식 (11)과 같은 배출지수 (Emission Index)를 도입하였다[12]. 이 식은 사용연료의 적분량에 대한 NO 발생 적분량의 비로서 일정 기준에 대한 NO 배출지수를 구할 수 있다.

$$\kappa = 2 \frac{(-u_o)}{L} \left[1 + \frac{u_f}{(-u_o)} \sqrt{\frac{\rho_f}{\rho_o}} \right] \quad (10)$$

$$EINO = \frac{\int_0^L W_{NO} \dot{\omega}_{NO} dx}{-\int_0^L W_{CH_4} \dot{\omega}_{CH_4} dx} \quad (11)$$

Figure 3은 당량비 1, 초기온도 864K, 상압에서의 스트레치율에 따른 EINO 발생특성을 각각의 메커니즘에 따른 값과 총량에 대한 발생량을 백분율로 나타내었다. 스트레치율의 증가에 따라 EINO 발생량은 감소하고 있는데 이것은 분사속도의 증가에 의한 체류시간감소로 화염온도 저하에 의해 NO 생성이 줄어드는 것으로 사료된다. 백분율을 살펴보면 스트레치율이 증가함에 따라 thermal EINO는 85%에서 70% 정도로 감소하며 prompt EINO는 15%에서 30% 가까이 증가하는 경향을 보이다 소염근처에서는 다시 반대경향을 보이고 있다. 그러나 소염스트레치 부근에서의 EINO의 전체 절대량이 크지 않기 때문에 경향은 큰 의미가 없을 것으로 사료된다. 또한, N₂O와 NO₂ 메커니즘에 의한 NO 발생은 크지 않는 것을 알 수 있다.

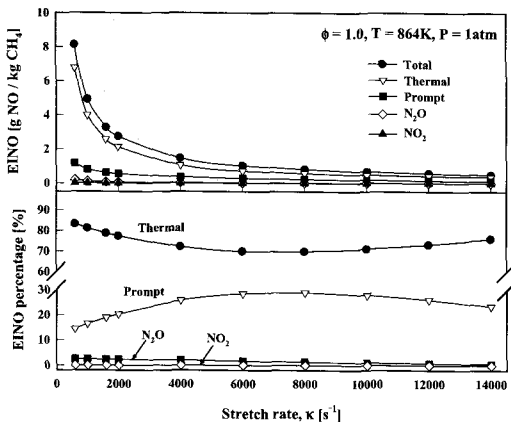


Fig. 3 EINO with stretch rate for each NO mechanism

3.3 당량비(Equivalence ratio)의 영향

Figure 4는 상압, 동일 스트레치율(1000s⁻¹)의 864K 온도조건에서 예혼합기의 당량비에 따른 EINO 발생특성을 나타낸 것이다. 당량비 1.0에서 최고 EINO 값을 나타내고 있으며 당량비가 작아지거나 커짐에 따라 발생량이 감소하고 있는 것을 볼 수 있다. 각각의 메커니즘의 백분율을 보면 기존의 계산방법으로 thermal EINO와 prompt EINO를 구하였을 경우 fuel rich 조건에서 90%이상 prompt EINO가 발생되는 것으로 알려져 있으나(Ref. 3, Fig. 5), 본 연구의 계산을 통하여 살펴본 경우 fuel rich 한 영역에서도 prompt NO의 비율은 20% 정도로 크게 변하지 않는 것을 알 수 있다. 다만 fuel lean 한 영역에서 발생 비율이 다소 증가하는 것을 볼 수 있는데 이것은 희박예혼합연소의 경우 prompt NO 메커니즘에 대하여 더욱 고려해야 된다는 것을 알 수 있다. N₂O 메커니즘의 경우 희박한 조건에서 발생비율이 증가하는 것을 볼 수 있으나 NO₂ 메커니즘의 경우 당량비 변화에 따른 영향은 볼 수 없었다.

당량비 변화에 따른 각각의 메커니즘에 대한 세부적인 사항은 좀더 연구가 필요하다고 사료되나, 본 연구에서는 단지 각각의 메커니즘에 의하여 생성되는 NO만을 고려하여 그 발생량을 정의하였다.

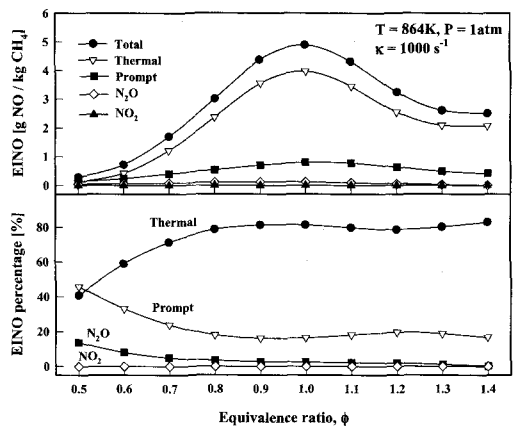


Fig. 4 EINO with equivalence ratio for each NO mechanism

3.4 압력(Pressure)의 영향

Figure 5는 압력 변화에 따른 EINO 발생특성을 상압에서 10기압까지 나타낸 것이다. 압력증가에 따라 EINO 발생량은 증가하고 있으며 초기 압력증가에 의한 변화폭이 더 큰 것을 알 수

있다. 이것은 압력 증가에 따라 화염의 최고 온도가 증가하는 영향으로 생각할 수 있다. 압력증가에 따라 thermal EINO 비율은 감소하는 경향을 보이고 prompt EINO는 증가하는 경향을 보이고 있으나 그 변화폭이 크지 않는 것을 알 수 있다. 또한, N₂O, NO₂ 메커니즘에 의한 NO 발생량은 매우 적으며 압력에 의한 변화도 크지 않음을 알 수 있다.

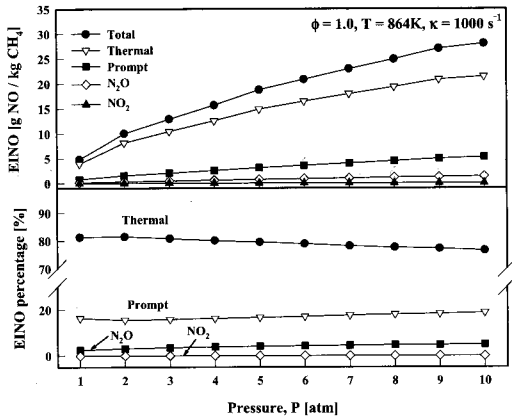


Fig. 5 EINO with pressure for each NO mechanism

3.5 초기온도(Initial temperature)의 영향

Figure 6은 예혼합기의 초기온도에 따른 EINO 발생특성을 나타낸 것으로 초기 온도 증가에 따라 EINO가 지수적으로 크게 증가하는 것을 알 수 있다. 메커니즘별로 살펴보면 thermal NO의 증가폭이 더욱 큰 것을 알 수 있으며 prompt NO의 경우 온도의존성이 그다지 크지 않음을 알 수 있다. 발생비율을 살펴보면 thermal NO의 증가율이 커져 상대적으로 prompt NO의 비율은 초기 온도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 보이고 있다. N₂O와 NO₂ 메커니즘의 영향은 거의 보이지 않고 있다.

3.6 온도 · 압력의 영향

Figure 7은 초기온도에 따라 압력증가에 따른 NO 발생특성이 다른 것을 보여주고 있다. 초기 온도가 높은 쪽이 압력증가에 의해 NO 발생 증가 경향이 큰 것을 알 수 있는데 이것은 고온일수록 압력증가에 의한 작은 온도증가도 NO 발생에 크게 영향을 주어 동일 압력에서 온도차이에 대한 NO 발생특성이 크게 다른 것을 알 수 있다.

Figure 8에 각 조건에서의 최고온도 분포를 나

타내 보았는데 초기 온도가 고온일수록 압력에 의한 최고온도 증가량이 크지 않음을 알 수 있다. 이런 현상을 바탕으로 고온 · 고압의 가스터빈 연소기 운전의 경우 상온 · 상압에 비하여 NO 저감에 대한 연구가 더욱 필요한 것을 알 수 있다.

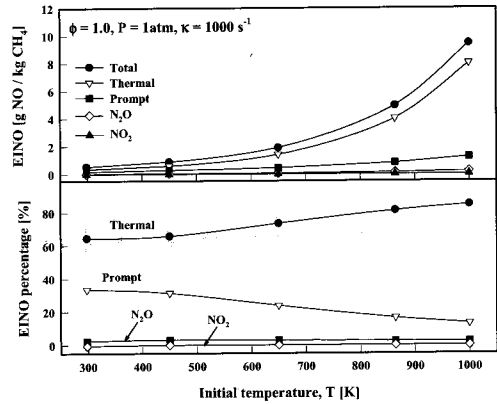


Fig. 6 EINO with initial temperature for each NO mechanism.

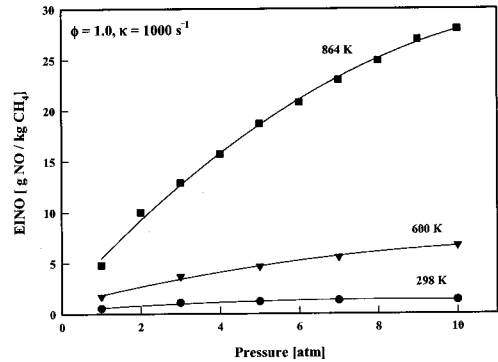


Fig. 7 EINO with initial pressure for various initial temperature

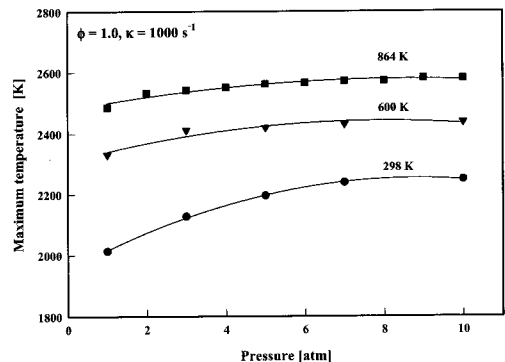


Fig. 8 Maximum temperature with pressure for various initial temperature.

4. 결 론

저공해 가스터빈 연소기 개발을 위한 기초 연구로 수치해석적 방법으로 연료의 분사속도 (스트레치율) 및 당량비를 변화시켜가면서 또한, 실험적으로 고찰하기 어려운 고온·고압 조건 하에서의 NO 발생특성을 확인하여 보았다.

(1) 스트레치율 증가에 따라 EINO는 감소함을 알 수 있는데 이것은 분사속도 증가에 의한 화염의 체류시간감소로 화염의 온도가 낮아지면서 NO 발생이 감소되는 것을 알 수 있다.

(2) 당량비 1.0 부근에서 최고온도 및 최대 EINO 값을 나타내며 당량비가 낮은 fuel lean한 영역에서는 전체 NO 발생량 중 prompt NO의 비율이 커짐을 알 수 있다.

(3) 초기 연료와 공기의 혼합기 온도증가에 따른 화염온도의 상승에 따라 EINO가 지수적으로 증가하였다. Prompt NO는 완만한 증가를 보였으나 온도증가에 따라 발생비율은 점차 감소함을 알 수 있다.

(4) 초기 압력 증가에 따라 온도 및 EINO는 증가하는 경향을 보이고 있으며, 초기온도가 높은 경우 압력변화에 따른 NO 발생증가폭이 큰 것을 알 수 있다. 따라서 고온·고압 연소에서 NO 저감에 대한 연구가 더욱 필요함을 알 수 있다.

후 기

이 논문은 전력연구원(KEPRI) 및 연소기술연구센터(CERC)에 의하여 지원되었음.

참고문헌

[1] A. H. Lefebvre, "Gas Turbine Combustion," Hemisphere Publishing Corporation, 1983.
 [2] A. M. Mellor, "Gas Turbine Engine Pollution," *Prog. Energy Combust. Sci.*, Vol. 1, 1976, pp. 111~133.
 [3] M. Nishioka, S. Nakagawa, Y. Ishikawa, and T. Takeno, "NO Emission Characteristics of Methane-Air double Flame," *Combust. Flame*, Vol. 98, 1994, pp. 127~138.
 [4] C. H. Sohn, I. M. Jeong, and S. H. Chung,

"Numerical Study of the Effects of Pressure and Air-Dilution on NO Formation in Laminar Counterflow Diffusion Flames of Methane in High Temperature Air," *Combust. Flame*, Vol. 130, 2002, pp. 83~93.

[5] D. Zhao, H. Yamashita, K. Kitagawa, N. Arai, and T. Furuhashi, "Behavior and Effects on NO_x Formation of OH Radical in Methane-Air Diffusion Flame with Steam Addition," *Combust. Flame*, Vol. 130, 2002, pp. 352~360.

[6] A. E. Lutz, R. J. Kee, J. F. Grcar, F. M. Rupley, "OPPDIF: A Fortran Program for Computing Opposed-Flow Diffusion Flames," SAND96-8243, 1997.

[7] R. J. Kee, F. M. Rupley, and E. Meeks, "CHEMKIN-III: A Fortran Chemical Kinetics Package for the Analysis of Gas-phase Chemical and Plasma Kinetics," SAND96-8216, 1996.

[8] R. J. Kee, J. Warnatz, and J. A. Miller, "A Fortran Computer Code Package for the Evaluation of Gas-phase Viscosities, Conductivities, and Diffusion Coefficients," SAND83-8209, 1983.

[9] G. P. Smith, D. M. Golden, M. Frenklach, N. W. Moriarty, B. Eiteneer, M. Goldenberg, C. T. Bowman, R. K. Hanson, S. Song, W. C. Gardiner Jr., V. V. Lissianski, and Z. Qin, GRI Mech. Ver. 3.0, http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/, 2000.

[10] Y. Ju and T. Niioaka, "Computation of NO_x Emission of a Methane-Air Diffusion Flame in a Two-Dimensional Laminar Jet with Detailed Chemistry," *Combust. Theory Modeling*, Vol. 1, 1997, pp. 243~258.

[11] H. K. Chellian, C. K. Law, T. Ueda, M. D. Smooke, and F. A. Williams, "An Experimental and Theoretical Investigation of the Dilution, Pressure and Flow-Field Effects on the Extinction Condition of Methane-Air-Nitrogen Diffusion Flames," *Proc. of Comb. Institute*, Vol. 23, 1993, pp. 503~511.

[12] T. Takeno and M. Nishioka, "Species Conservation and Emission Indices for Flame Described by Similarity Solutions," *Combust. Flame*, Vol. 92, 1993, pp. 465~448.