근사 화학반응 자코비안을 이용한 화학반응 유동해석

Approximate Chemical Jacobian Methods for Reactive Flow Simulations

김성룡[1], 최정열[2], 정인석[1], 박양호[1]
Seong-Lyong Kim, Jeong-Yeol Choi, In-Seuck Jeung and Yang-Ho Park

The Equations of Chemical kinetics are very stiff, which forces the use of an implicit scheme. The problem of implicit scheme, however, is that the jacobian must be solved at each time step. In this paper, we examined the approximate chemical jacobian methods such as Gauss-Seidel, Jacobi partial jacobian and diagonalized jacobian that can be stable without full jacobian, We show that Gauss-Seidel jacobian method is stable and accurate as well as full jacobian and that this is more efficient in supersonic combustion problem about 20% than the full jacobian method with same accuracy.

1. 서 론

화학반응으로 인한 경직성 때문에 화학반응 유동의 수치해석에는 화학반응 자코비안을 이용하는 내재적 기법이 많이 사용된다. 그러나, 내재적 기법은 자코비안과 그 역행렬을 구하는 과정에 많은 연산시간이 소요된다는 단점이 있다. 특히 LU-SGS[1] 수치기법의 경우 화학반응 자코비안은 행렬연산을 필요로 하지 않는 LU-SGS 고유의 장점을 잃게 만든다. 따라서 내재적 기법의 안정성을 유지하면서 효율적인 화학반응 계산이 가능한 화학반응 유동의 수치기법이 필요하다.

이에 대한 시도로 화학반응 및 화학반응 유동 계산에서 화학반응 자코비안을 근사화 시키는 시도가 있었다[2,3]. Eberhardt와 Imlay[2]는 화학반응 자코비안의 대각항을 각 행의 L_2 노음(norm)으로 대치하고 비대각 성분은 0으로 하는 대각화 자코비안을 도입한 바 있다. 그들은 대각화 자코비안을 LU-SGS 수치기법에 결합하여 획기적으로 계산시간을 단축하였다. 그러나, 대각화 화학반응 자코비안은 정상상태의 극초음속 화학반응 유동에 제한적으로 적용되었다.

연소화학반응은 아니지만 성층권 대기화학반응 연구에서 외재적 기법의 효율성과 내재적 기법의 안정성을 동시에 획득하려는 시도들이 있다. Aro와 Rodrigue[3]는 성층권의 대기 화학반응(atmospheric kinetics)에서 화학반응, 대류항, 점성항을 따로 분리하는 연산자 분리(operator splitting)을 통해 생성된 일차 상미분 방정식 형태의 화학반응 계산에 예조건화 시간 차분(preconditioned time stepping)을 적용하여 안정적이며 효율적인 수치기법을 개발하였다. 그러나, 대기 화학반응의 시간 간격은 초 단위의 시간 간격에서 길게는 몇 시간의 시간간격에서 이루어지는 느린 반응임에 비하여, 연소 화학반응은 빠를 경우 1μsec 이하의 시간동안 반응이 완료되므로 대기 화학반응과는 다른 결과를 기대할 수 있다. 이에 본 연구에서는 예조건화 시간 차분법에서 유도되는 가우스-자이델, 자코비 부분 자코비안과 대각화 자코비안을 연소 화학반응 및 화학반응 유동에 적용하여 정확성 및 효율성을 검증하고자 한다.

2. 근사화학반응 자코비안과 무차원 화학반응

2.1 예조건화 시간선택을 이용한 화학반응 자코비안의 유도

화학반응은 다음과 같은 일차의 상미분 방정식으로 표현된다.

$$\frac{dY_i}{dt} = f_i(Y_1, Y_2, \cdots, Y_i, \cdots, Y_{NS}, e), \quad i=1, NS+1 \tag{1}$$

Y_i와 e는 화학종과 에너지 방정식의 독립변수를 의미하고, 상태방정식을 통해 독립변수 이외의 상태변수들을 구할 수 있다. 완전 내재적 기법은 식 (1) 좌변의 시간미분항을 (n+1)시간 단계에서 오일러 후방 차분법을 적용하는 형태를 말하며, 예조건화 시간 차분기법은 완전 내재적 기법에서 우변의 시간단계를 화학종에 따라 (n+1) 시간단계와 (n) 시간단계를 다르게 적용하는 것을 말한다.

1) 서울대학교 항공우주공학과 (151-742 서울시 관악구 신림동 산 56-1 Tel : 02-880-7390
2) 부산대학교 항공우주공학과 (609-735 부산시 금정구 장전동 산30 Tel : 051-810-1545

$$\frac{dY_i}{dt}^{n+1} = f_i\left(Y_1^{n+1}, \cdots, Y_i^{n+1}, Y_{i+1}^{n}, \cdots, Y_{NS}^{n}, e^n\right) \tag{1}$$

식 (2)과 같이 i 번째 화학종까지 (n+1) 시간단계를 취하면 가우스-자이델(Gauss-Seidel) 예조건화 시간 차분법이고, i 번째 화학종에만 (n+1)시간단계를 선택하면 자코비(Jacobi) 예조건화 시간 차분법이다. 또한, 식 (2)를 선형화하면 완전 자코비안에서 하삼각 행렬만 취한 가우스-자이델 부분 자코비안과 대각화 행렬만 취한 자코비 부분 자코비안이 유도된다. 이렇게 유도되는 부분 자코비안을 연소 화학반응에 적용하여 보겠다.

연소화학반응은 매우 짧은 시간에 온도와 압력 또는 체적의 급격한 변화를 동반한다. 이러한 연소화학반응을 특징짓는 모델로서 10기압의 1200K의 이론혼합비의 수소-산소 정적 화학반응을 택하였다. 이 조건하에서 화학반응은 서서히 진행하다 점화 지연시간에서 급격한 화학반응을 일으켜 불과 1~2 μ sec 동안 화학반응이 완료된다. 따라서 점화 지연시간과 화학반응 완료후의 온도를 비교하면 수렴결과의 정확성과 더불어 시간정확성을 살펴볼 수 있다.

정적연소 방정식의 독립변수인 화학종의 몰율(molar concentration) 순서는 H_2, O_2, H, O, OH, HO_2, H_2O, H_2O_2로 하였으며 지배방정식은 식 (3),(4)와 같고 에너지 방정식은 완전 내재적으로 해석하였다.

$$\frac{dC_i}{dt} = \omega_i = \sum_{k=1}^{NR}(\nu''_{i,k} - \nu'_{i,k})\left\{k_{fk}\prod_{j=1.}^{NS} C_j^{\nu'_{j,k}} - k_{bk}\prod_{j=1.}^{NS} C_j^{\nu''_{j,k}}\right\} \tag{2}$$

$$\frac{dT}{dt} = \frac{R_u T\sum_i \omega_i - \sum_i h_i\omega_i}{\sum_i C_i(c_{p_i} - R_u)} \tag{3}$$

수치기법으로 2차의 시간정확도에 뉴튼 내부반복을 수반하는 완전 내재적 기법과 1차 시간정확도에 내부 반복이 없는 단순 적분법을 개발하였다. 뉴튼 내부반복에 사용되는 자코비안은 완전 자코비안과 근사 자코비안 모두를 이용하였으며, 뉴튼 내부반복의 수렴은 상대오차 한계(RTOL)과 절대오차 한계(ATOL)를 조합하여 $ERROR < ATOL+RTOL \cdot Y_i$로 판단하였다. 대각화 자코비안을 제외한 근사 화학반응 자코비안 계산은 완전 자코비안을 유도한 후 부분항만을 계산에 포함하는 방식을 취했다. 화학반응식은 GRI Mech. V.2.11[4]의 8화학종 24 화학반응 단계를 적용하였으며, 화학종의 정압비열 등의 열역학적 값들은 NASA 다항식 형태의 값들을 사용하였다.

2.2 정적 화학반응 결과

내부반복이 없는 완전 내재적, 가우스-자이델과 자코비 부분 내재적, 대각화 자코비안 및 외재적 기법의 결과를 비교하여 그림 1에 제시하였다. 그림 1(a)는 시간 간격이 $10^{-3}\mu$sec로서, 외재적 기법과 대각화 자코비안을 제외한 결과들은 거의 동일하며 대각화 자코비안도 점화 지연시간만이 약간 크게 나왔다. 외재적 기법의 경우 점화 지연시간은 일치하지만 화학반응이 끝나는 점에서 곧바로 발산하였다. 외재적 기법은 시간간격 $10^{-4}\mu$sec 이하에서 정확한 화학반응을 해석할 수 있었다.
그러나, 시간 간격이 큰 $10^{-2}\mu$sec의 그림 1(b)에서 완전 내재적 기법은 정확한데 비하여, 근사 자코비안은 가우스-자이델과 자코비 부분 자코비안, 대각화 자코비안 순서로 차이를 보였다. 특히, 대각화 자코비안은 점화 지연시간 예측에서 많은 큰 차이를 보였다. 가우스-자이델과 자코비 부분 내재적 기법이 보이는 점화 지연시간과 최종 온도의 오차는 예조건화 시간 차분법에서 보존성이 성립되지 않은 결과로 사료된다. 예조건화 시간 차분법에서 보존성이 성립되지 않는다는 점은 Aro와 Rodrigue[3]가 지적한 바 있었다.

그러나, 근사 자코비안의 보존성 및 정확성은 각 시간구간에 뉴튼 내부 반복을 수행함으로써 개선될 수 있다. 즉, 뉴튼 내부 반복에서 완전 자코비안을 근사 자코비안으로 대치하면 각 시간단계의 정확성과 더불어 근사 자코비안의 효율성이 나타나게 된다. 그림 1(c)는 시간 간격 $10^{-2}\mu$sec에서 ATOL과 ATOL을 각각 10^{-15}, 10^{-8}로 고정한 계산결과로서, 완전 자코비안, 가우스-자이델과 자코비 부분 자코비안, 대각화 자코비안이 모두 동일하였다. 다만 자코비 자코비안은 시간간격 $10^{-2}\mu$sec에서 발산하여 $10^{-3}\mu$sec에서 계산한 결과이다. 또한, 경직성 있는 상미분 방정식의 대표적 해법인 LSODE[5]도 동일한 결과를 보였다.

3 2차원 화학반응유동

화학반응 유동의 수치해석에는 많은 방법이 있지만, 본 연구에서는 시간 전진 기법을 이용한 초음속

연소해석에 한하여 근사 자코비안 기법을 적용하겠다. 초음속 연소는 Lehr의 실험[6]과 같이 충격파와 연소면의 분리, 결합과 연소면의 주기적 진동 등 화학반응의 비평형 효과가 직접적으로 나타나므로 근사 자코비안의 효율성과 정확성을 검증하는 좋은 예라 사료된다. 본 연구에서는 Eberhardt와 Imlay[2]의 대각화 자코비안 외에도 자코비와 가우스 자이델 부분 자코비안을 정상 유동과 비정상 유동에 적용하여 수렴성과 정확성을 비교하겠다.

정상 연소에는 Lehr의 실험[6] 중 상대적으로 정상상태에 가까운 수소-산소 이상 예혼합기에서 마하수 3.55로 비행하는 지름 15mm의 탄체를 해석하였으며, 비정상 연소로는 주기적인 연소면 진동현상이 나타나는 수소-공기 이상 예혼합기에서 마하수 4.48로 비행하는 탄체를 해석하였다.

3.1 수치기법

수치해석에는 참고문헌[7]의 코드를 이용하였다. 지배 방정식은 비점성이며 벡터 형태로 다음과 같다.

$$\frac{\partial Q}{\partial t}+\frac{\partial E}{\partial x}+\frac{\partial F}{\partial y}+H=W \tag{4}$$

E, F는 각각 x와 y방향의 대류항이고 H와 W는 축대칭항과 화학반응 생성항을 나타낸다. 공간차분은 Roe의 근사 리만(Riemann) 해법을 이용하였으며 시간적분에는 근사 플럭스 자코비안을 적용한 LU-SGS 기법을 적용하였다.

$$D_{i,j}\,\Delta Q^{*}_{i,j} = RES_{i,j} + A^{+}_{i-1,j}\,\Delta Q^{*}_{i-1,j} + B^{+}_{i,j-1}\,Q^{*}_{i,j-1} \tag{5}$$

$$D_{i,j}\,\Delta Q_{i,j} = D_{i,j}\,\Delta Q^{*}_{i,j} - A^{-}_{i-1,j}\,\Delta Q_{i+1,j} - B^{-}_{i,j-1}\,Q_{i,j+1} \tag{6}$$

$$RES = -\left(\frac{\partial \overline{E}}{\partial \xi}+\frac{\partial \overline{F}}{\partial \eta}+\frac{1}{J}H+\frac{1}{J}W\right) \qquad D=\frac{I}{J\Delta\tau}+\chi\{\rho(A)+\rho(B)\}+R \tag{7}$$

A,B는 플럭스 자코비안, R은 화학반응 자코비안, ρ는 자코비안 최대 특성치를 나타낸다. 정상 상태의 문제에는 국소시간 전진기법(local time stepping)과 최소시간 전진기법(minimum time step)을 모두 적용하였으며, 비정상 문제에는 최소시간 전진법을 적용하였다. 다만 최소시간 전진기법에서 극소적으로 속도가 낮으면 매우 더디게 수렴하는 문제를 막고자 국소 속도 대신 자유류 속도로서 시간간격을 결정하였다. 정상상태의 화학반응 모델로는 Evans와 Schexnayder[8]의 6화학종 8단계 반응 모델을 채택하였으며, 비정상 문제에는 Jachimowski[9]의 8화학종 19단계 모델을 도입하였다.

3.2 정상 유동

초기압력과 온도가 각각 186 mmHg과 292 K에서 마하수 3.55로 비행하는 탄체에는 궁형 충격파와 충격파에서 분리된 연소면이 궁형 충격파와 탄체 사이에 형성된다. 국소시간 전진 기법과 완전자코비안을 이용하여 수렴된 결과를 격자점에 따라 그림 6에 나타냈다. 사용된 격자점은 30×80, 60×120, 90×150의 세 가지이고 화학종 순서는 H_2, O_2, OH, H_2O, H, O, N_2 이다.

근사 자코비안의 수렴특성은 격자점 30×80에서 최소시간과 국소시간 전진기법에 따라 완전 자코비안의 결과와 비교하여 수렴곡선과 수렴결과를 그림 2에 나타냈다. 국소시간과 최소시간법 모두 CFL 수는 5이고 계산 초기의 완만한 시작을 위하여 반복횟수 30까지 CFL 수를 0.1로 고정하였다. 대각화 자코비안의 완화계수 β는 1.1이고 자코비 자코비안은 CFL 수 5에서 발산하였기 때문에 1로 조정하였다.

그림 2에서 가우스-자이델 자코비안은 완전자코비안과 비슷한 반복횟수 이내에 수렴하였지만, 대각화 자코비안은 수렴하지 않고 진동하였으며 자코비 자코비안은 더디게 수렴하였다. 그림 3의 수렴결과에서 가우스-자이델과 자코비 자코비안의 수렴 결과는 완전 자코비안과 동일하며 주어진 반복횟수를 마친 대각화 자코비안은 완전 자코비안과 동일한 충격파 위치를 나타냈지만 반응면의 위치 및 크기에서 차이를 보였다. 따라서 정적 연소에서 확인하였듯이 자코비 자코비안은 다른 근사 자코비안에 비하여 시간 제약이 크며, 대각화 자코비안은 정확한 화학반응 계산에 부적합하다는 것을 알 수 있다.

표 1에 격자점, CFL 수, 자코비안을 변화시키면서 연산시간을 비교하였다. 격자점에 따라 다르지만 많은 경우 가우스-자이델 부분 자코비안은 20%에 가까운 연산시간 개선이 이루어졌다. 그러나, 자코비 부분 자코비안은 간단한 행렬 연산에도 불구하고 반복횟수가 늘어나 전체 소요시간이 가우스-자이델 자코비안에 비하여 많이 증가했다. 대각화 자코비안은 β를 1로 하였을 경우 수렴하지 않았으므로 다른 자코비안과 비교하지 않았다.

3.2 비정상 유동

혼합기 초기온도와 압력은 각각 293 K와 320 mmHg이고, 연소면은 425 *kHz*로 진동하는 것으로 알려져 있다. 수치해석에 사용된 격자는 200×300이고 화학종의 순서는 H_2, O_2, H, O, H_2O, OH, HO_2, H_2O_2, N_2 이다. 내부반복의 오차한계는 10^{-2}로 정하였고 내부 반복의 총 횟수는 4로 제한하였다. 수치기법의 정확한 설명과 주기적 연소에 대한 해석은 참고문헌[7]에 자세히 제시되어 있다. 화학반응 자코비안의 비교는 완전 내재적 자코비안으로 주기적 현상을 관찰한 후, 자코비안을 달리하여 계산하였다. 이때 CFL수는 3을 유지하였고, 계산은 DEC personal Workstation에서 수행하였다.

그림 4는 같은 조건에서 출발하여 1000번의 시간 전진한 후의 정체점의 밀도 곡선을 완전 자코비안과 비교한 그림으로서 완전 자코비안, 가우스-자이델 자코비 부분 자코비안은 모두 동일한 결과로, 426 *kHz*의 주파수가 포착되었다. 그러나, 대각화 자코비안은 시간이 지날수록 주기적 연소 현상이 사라지는 것을 관찰하였다. 이는 내부반복횟수를 5로 제한하여 충분히 수렴하지 못하면서 나타나는 현상으로 사료된다.

각 자코비안의 효율성은 오차한계가 변화에 따른 단위 시간 전진에 소요되는 시간으로 비교하였으며 표 2에 나타냈다. 가우스 자이델과 자코비 부분 자코비안은 완전 자코비안과 비슷한 반복횟수를 보였으며 연산시간은 20% 정도 감소하였다. 대각화 자코비안은, 정해진 오차한계에 필요한 반복횟수가 매우 커서 연산시간이 많아졌고 오차한계 10^{-5} 이상에서는 수렴하지 못하였다.

4.결론

화학반응 자코비안의 예조건화 시간차분을 이용한 자코비, 가우스-자이델 부분 자코비안을 도입하여 무차원 화학반응과 2차원 초음속 정상, 비정상 연소에 적용하였다.

정적 연소 화학반응의 경우, 가우스-자이델 부분 자코비안은 높은 안정성과 정확성을 보였다. 자코비 부분 자코비안은 정확성에서 가우스-자이델과 비슷하지만 시간제한이 컸다. 대각화 자코비안은 점화지연시간과 최종온도에서 많은 차이를 보였고, 뉴튼 내부 반복에서 많은 반복횟수가 필요하였다. 결과적으로 가우스-자이델 부분 자코비안이 완전 자코비안의 내재적 기법과 비슷한 안정성과 정확성을 보장하는 것을 나타났다.

정상 충격파 유도 연소에 부분 자코비안과 대각화 자코비안을 적용한 결과 가우스-자이델 부분 자코비안이 가장 많은 연산시간의 절약을 가져왔고, 자코비 자코비안은 시간제한이 커서 많은 연산시간이 소모되었다. 또한, 본 연구에서 대각화 자코비안은 지나치게 많은 반복횟수를 요구하였다.

뉴튼 내부반복을 이용한 초음속 비정상연소에서도 가우스-자이델과 자코비 부분 자코비안은 완전 자코비안과 동일한 정확도를 보였으며 20%에 가까운 연산시간 개선이 있었다. 대각화 자코비안은 정상연소와 마찬가지로 많은 내부 반복을 요구하여 비효과적이었다.

본 연구를 통해 가우스-자이델 부분 화학반응 자코비안이 완전내재적 기법과 동등한 안정성과 정확도를 보장한다는 것을 확인하였고, 뉴튼 내부반복 기법에도 효과적으로 적용하여 연산시간의 감소를 이루었다. 이러한 근사 자코비안 기법은 격자점이 비약적으로 증가하는 3차원 화학반응 문제에서 더욱 효과적일 것이라 사료된다.

참고문헌

[1] Yoon, S., and Jameson, A., "Lower-Upper Symmetric-Gauss-Seidel Method of the Euler and Navier-Stokes Equations," *AIAA Journal*, Vol 26, No. 9, 1988

[2] Eberhardt S., and Imlay, S., "Diagonal Implicit Scheme for Computing Flows with Finite Rate Chemistry," *Journal of Thermophysics and Heat Transfer*, Vol 6., No. 2., 1992. pp.208-216.

[3] Aro, C. J., and Rodrigue, G.H., "Preconditioned time differencing for stiff ODEs in diurnal atmospheric kinetics", *Computer Physics Communication* 92 pp.27-53, 1995

[4] Bowman, C. T., Hanson, R. K., Davidson, D. F., Gardiner, W. C. Jr., Lissianski, V., Smith, G. P., Golden, D. M., Frenklach, M., and Goldenberg, M., http://www.me.berkeley.edu /gri_mech/

[5] Hindmarsh, A.C., "LSODE and LSODI, Two New Initial Value Ordinary Differential Equation Solver", *ACM SIGNUM Newsletter*, Vol. 15, pp.10-11, 1980

[6] Lehr, H. F., "Experiment on Shock-Induced Combustion," *Astronautica Acta*, Vol. 17, Nos. 4 & 5, 1972, pp. 589-797

[7] Choi, J.-Y., Jeung, I.-S., and Yoon, Y., "Validation of CFD Algorithms for Unsteady Shock

Induced Combustion", *AIAA Journal*, submitted
[8] Evans, J. S., and Schexnayder, C. J., "Influence of Chemical Kinetics and Unimixedness on Burning in Supersonic Hydrogen Flames." *AIAA Journal*, Vol. 18, Feb. 1980, pp. 188-193
[9] Jachimowski, C. J., "An Analytical Study of the Hydrogen-Air Reaction Mechanism With Application to Scramjet Combustion," NASA TP-2791, Feb. 1988.

Jacobian	Iteration			Time		
	30× 80	60× 120	90× 150	30× 80	60× 120	90× 150
Full Jacobian	2509	4299	4599	358	2084	4310
Gauss-Seidel	2779	3939	4569	348	1685	3781
Jacobi	8509	13389	15339	1057	5673	12607

Table 1. Total iteration and elapsed time of LU-SGS scheme, where CFL is 5, RTOL is 10^{-4} and minimum time step is adopted.

Error Tolerance	Full Jacobian		Gauss -Seidel		Jacobi		Diagonalized	
	Time	N_{sb}	Time	N_{sb}	Time	N_{sb}	Time	N_{sb}
10^{-2}	50.4	7.3	41.4	7.3	41.0	7.3	59.4	9
10^{-3}	71.2	11	61.9	11	61.5	11	87.4	16
10^{-4}	96.63	15.1	79.7	15.1	78.6	15.1	208.0	39.2
10^{-5}	126.3	20.1	106.1	20.1	105.0	20.1	-	-
10^{-6}	164.5	25.6	131.3	25.6	131.1	25.6	-	-

Table 2. Elapsed time and average subiteration number, N_{sb}, per unit time step of unsteady shock induced combustion for different tolerance error

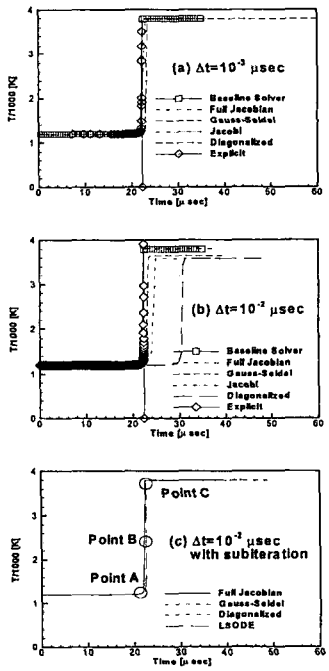

Figure 1. Temperature profile of hydrogen oxygen constant volume reaction (a) $\Delta t=10^{-3}\,\mu$ sec (b) $\Delta t=10^{-2}\,\mu$ sec (c)newton iteration of Δt, $10^{-2}\,\mu$ sec

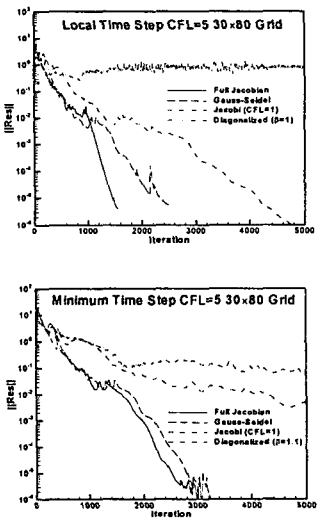

Figure 2. Convergence history of different jacobian.

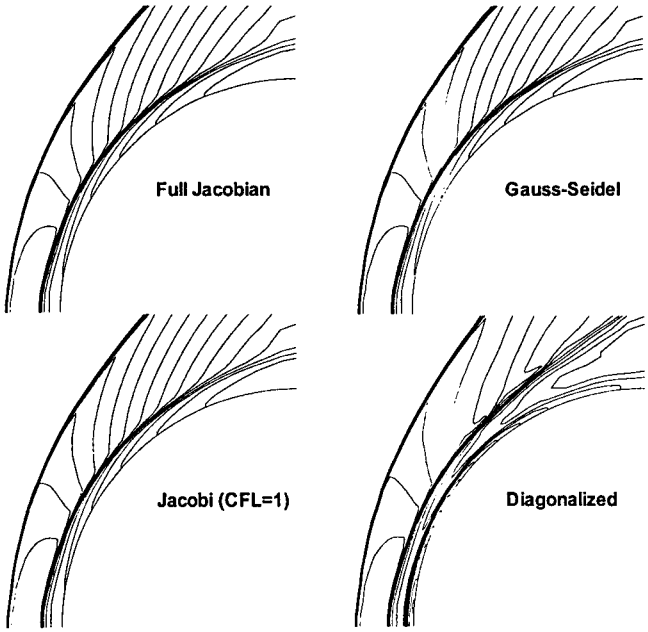

Figure 3. Density contours of shock induced combustion

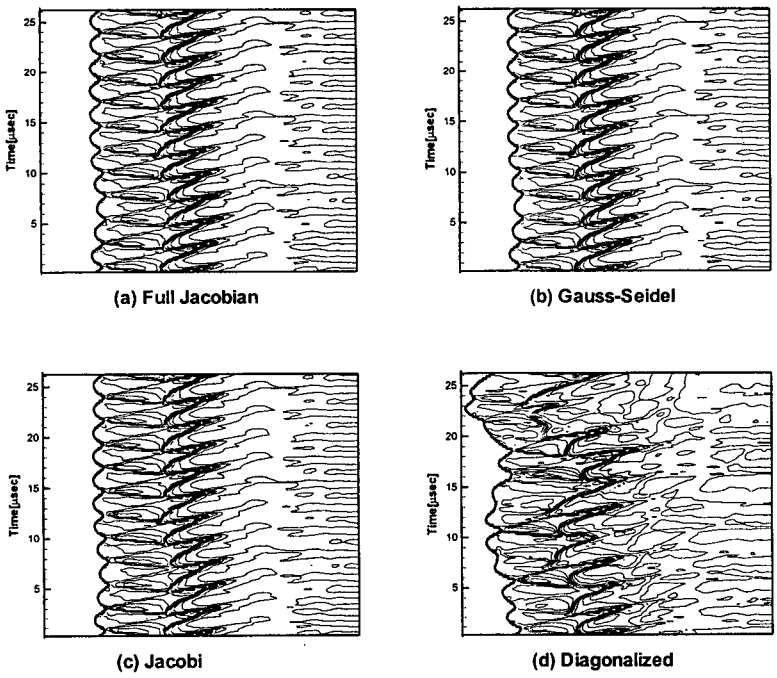

Figure 4. Time history of density at stagnation line in the oscillating shock induced combustion