

프로판의 촉매연소 특성에 관한 수치적 연구

이연화* · 김종민* · 김만영* · 유명종**

A Numerical Study on the Propane Combustion Characteristics in a Catalytic Combustor

Younhwa Lee* · Chongmin Kim* · Man Young Kim* · Myoung Jong Yu**

ABSTRACT

The catalytic combustor has the advantage of stable combustion under very lean conditions with low emissions of NO_x , CO and unburned hydrocarbon(UHC). Notwithstanding these advantages, the commercial application of the catalytic combustion has been delayed due to the complicated reaction process. For the stable operation of catalytic combustor, study on the combustion characteristics of the catalytic combustor is needed. So, in this study, numerical study on the propane combustion characteristics of the catalytic combustor with Pd-based catalyst is performed.

초 록

촉매 연소는 낮은 온도와 희박한 조건에서 연소가 가능할 뿐만 아니라 NO_x , CO, UHC와 같은 오염 물질을 효과적으로 감소시킬 수 있다. 하지만 촉매연소는 균질 반응뿐만 아니라 비균질 반응에 의해서 지배되는 매우 복잡한 반응과정을 가지고 있기 때문에 촉매 연소기의 안정적인 작동을 위해서는 다양한 탄화수소의 촉매연소 특성에 대한 연구가 필요하다. 연구에서는 메탄 촉매연소 특성에 대한 수치적 연구의 검증을 거친 후 수소의 공급량, 과잉공기비, 그리고 공간속도의 변화에 따른 프로판의 촉매연소 특성을 고찰하였다.

Key Words: Catalytic combustor (촉매연소기), Hydrocarbon (탄화수소), Excess air ratio (과잉공기비), Space velocity (공간속도)

1. 서 론

일반 연소(conventional combustion) 방식은 이미 오래 전부터 사용되어 왔기 때문에 적용 분야에 따라 적절히 최적화되어 있지만 NO_x 나 UHC, 그리고 CO와 같은 오염물질의 배출을 제어하기가 어렵고, 특히, NO_x 의 경우 화염 온도를 감소시킴으로써 저감시킬 수 있지만, 화염 안

* 전북대학교 항공우주공학과

** 한국항공우주연구원 위성 열/추진팀

연락처, E-mail: manykim@chonbuk.ac.kr

정성과 압력 맥동, 그리고 낮은 연소 효율 등에 의한 제한 사항을 가지고 있다[1]. 한편, 촉매연소(catalytic combustion)는 일반연소와는 달리 촉매표면에서 연료와 산화제의 화학 반응에 의해 이루어지는 연소방식으로서, NOx, UHC, 그리고 CO등과 같은 오염물질을 효과적으로 감소시킬 수 있을 뿐만 아니라 동시에 좋은 연소효율을 가지며, 보다 낮은 온도와 희박 조건에서도 산화가 가능하다는 장점이 있다[2]. 이러한 이유로 촉매연소는 낮은 공해물질 배출을 요하는 가스 터빈의 연구에 사용되어 왔다[1,3,4].

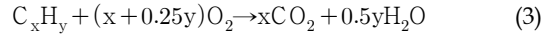
하지만, 촉매연소는 균질반응(homogenous reaction) 뿐만 아니라 반응물의 확산, 흡착, 표면반응, 탈착, 그리고 생성물의 확산 등과 같은 비균질반응(heterogenous reaction)에 따른 매우 복잡한 반응 과정을 가지고 있다[2]. 따라서 촉매연소의 연소특성 분석 및 최적화는 촉매연소기의 안정적인 작동을 위해서 매우 필수적이다. 따라서 본 연구에서는 촉매연소기의 탄화수소 연소특성에 대한 수치적인 연구를 수행하였다. 촉매연소기 작동조건의 변화에 따른 연료 전환율(conversion)과 온도 변화에 대한 실험 데이터를 이용하여 촉매연소에 필요한 반응계수를 도출한 후 수소의 공급량, 과잉공기비, 그리고 공간속도의 변화에 따른 프로판의 촉매연소의 특성 변화에 대한 수치적 분석을 수행하였다.

2. 수치해석 모델

촉매연소는 기상인 반응물 또는 생성물과 고체상인 촉매를 포함하고 있으므로 비균질 반응(heterogeneous reaction)이며, 연소반응이 촉매표면 위에서 발생하기 때문에 반응물은 기체-고체 경계면으로 전달되어야 한다. 따라서 전체적인 연소과정의 모델링은 물리적인 전달현상과 화학적인 반응 단계를 모두 고려해야 한다.

하니컴 타입의 촉매연소기에 대해 반경 방향의 열전달은 축방향의 값에 비해 작다는 가정 하에 전체 반응기는 하나의 채널로서 단순화시킬 수 있기 때문에 비정상, 1차원 보존방정식을 사용하였으며, 반응은 각 연료에 대하여 1-step

global reaction으로 가정하였다.



해석에 사용된 반응 모델로서 Langmuir-Hinshelwood에 의한 반응 속도식을 적용하였으며, 각각의 반응에 대한 반응률은 다음과 같다.

$$\dot{r}_1 = \frac{K_1 y_{\text{H}_2} y_{\text{O}_2}}{D}, \quad \dot{r}_2 = \frac{K_1 y_{\text{CO}} y_{\text{O}_2}}{D} \quad (4)$$

$$\dot{r}_i = \frac{K_i y_{\text{C}_x\text{H}_y} y_{\text{O}_2}}{D} \quad (i = 3-4) \quad (5)$$

$$D = T_{\text{solid}} \left(1 + K_2 y_{\text{CO}} + K_3 y_{\text{C}_x\text{H}_y} \right)^2 \left(1 + K_4 y_{\text{CO}}^2 y_{\text{C}_x\text{H}_y}^2 \right) \left(1 + K_5 y_{\text{NO}}^{0.7} \right),$$

$K_i = k_i \exp(-T_{A,i}/T_{\text{solid}})$ 는 frequency factor, $T_{A,i}$ 는 activation energy를 나타낸다.

3 결과 및 토의

3.1 수치해석과 실험데이터의 비교

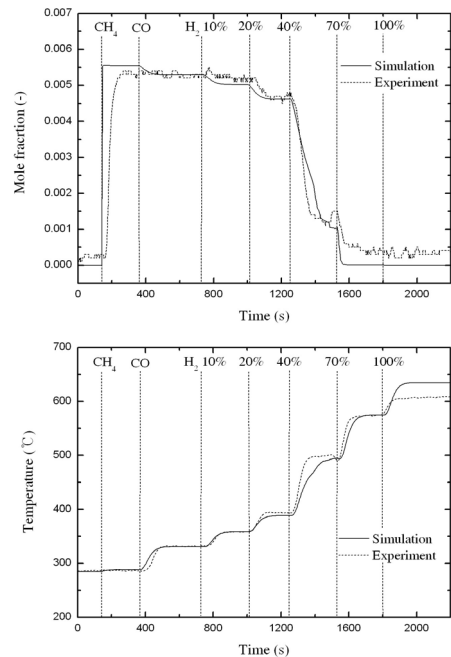


Fig.1 Comparison of simulation and experiment results : (a) CH₄ mole fraction (b) outlet temperature

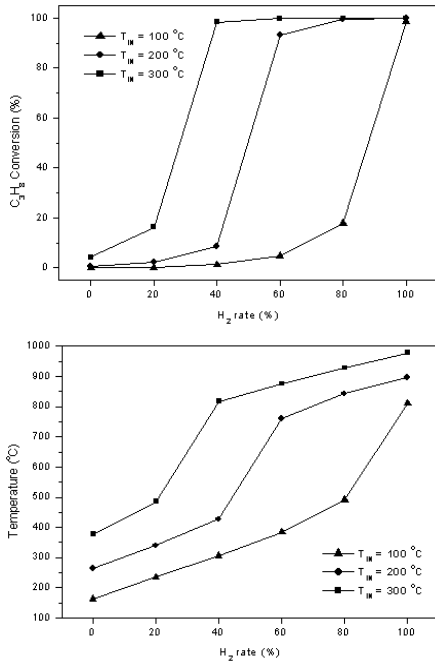


Fig. 2 Effects of H₂ supply rate on the (a) C₃H₈ conversion and (b) outlet temperature

Fig. 1은 60%의 연료 이용률, 예열온도 285°C 일 때 CH₄, CO, H₂의 순서로 연료를 공급하면서, 그에 따른 CH₄ 농도와 연소기 출구 온도 변화에 대한 해석 및 실험 결과를 비교한 그래프이다. Fig. 1(a)는 CH₄의 농도 변화를 나타낸 그래프로서, CH₄만 공급하였을 경우 반응이 전혀 일어나지 않고, CO를 공급하였을 경우에는 약간의 농도 감소만 일어나며, H₂ 공급량이 증가함에 따라 농도 감소 또한 증가하고, 특히, 40%의 H₂ 공급 시 급격한 농도감소가 일어남을 볼 수 있다. 한편, Fig. 1(b)는 연소기 출구의 온도 변화를 나타낸 것으로서 CH₄, CO, H₂를 공급함에 따라 출구온도 또한 단계적으로 증가함을 알 수 있다.

3.2 수소 공급량에 따른 촉매연소 특성

H₂ 연소는 촉매온도가 C₃H₈의 반응 개시 온도까지 높아질 수 있도록 충분한 열을 공급해주는 역할을 한다. 따라서, H₂ 공급량에 따른

C₃H₈ 전환율과 출구온도에 대한 영향을 Fig.2에 나타내었다. H₂ 공급량이 증가할수록 C₃H₈ 전환율과 출구 온도 모두 증가함을 알 수 있다. 또한 예열온도가 100°C인 경우, 20%의 H₂만 공급되었을 경우 촉매부의 출구 온도는 H₂ 연소에 의해 증가하였지만 C₃H₈의 반응은 아직 시작되지 않고 있다. 하지만 H₂의 공급량을 기준 조성의 40%까지 증가시키기에 따라 C₃H₈ 전환율이 증가하기 시작하였으며, 100%의 H₂ 공급량에서는 대부분의 C₃H₈가 반응하고 있는 것을 확인할 수 있다. 이것은 H₂에 의해 발생한 열에 의해 촉매부의 온도가 LOT(Light Off Temperature) 이상으로 상승하게 되고 그에 따라 촉매 표면에서 C₃H₈에 대한 표면반응이 시작된 것을 의미한다. C₃H₈ 반응이 시작됨에 따라 촉매부를 통과한 출구 온도는 급격히 상승하여 약 810°C에 이르렀으며, 최종적으로 98.7%의 전환율을 보였다. 한편, 예열온도를 증가시키기에 따라 낮은 H₂ 공급량에서도 높은 C₃H₈ 전환율을 보이고 있음을 확인할 수 있다.

3.3 과잉공기비에 따른 촉매연소 특성

촉매 연소기는 주로 희박 연료 혼합가스에 이용되기 때문에 과잉공기비가 촉매연소 특성에 미치는 영향에 대한 연구는 필수적이다. Fig. 3은 입구온도가 각각 100°C, 200°C, 300°C일 때 과잉공기비에 따른 C₃H₈ 전환율과 출구온도의 변화를 나타낸다. 입구온도가 100°C일 때 과잉공기비가 증가할수록 C₃H₈ 전환율과 출구 온도 모두 감소하며, 특히, 과잉공기비를 6이상으로 증가시켰을 때, C₃H₈ 전환율이 급격하게 감소함을 볼 수 있는데, 이는 공기량 증가에 따른 온도 감소와 공간속도의 증가가 동시에 C₃H₈ 전환율에 영향을 미치기 때문이다. 한편, 입구 예열온도가 200°C로 증가함에 따라 과잉공기율 증가에 따른 전환율과 출구온도의 감소폭이 줄어들었으며, 예열온도 300°C에서는 연료의 전환율을 유지한 채 출구 온도만 감소하는 것을 알 수 있다.

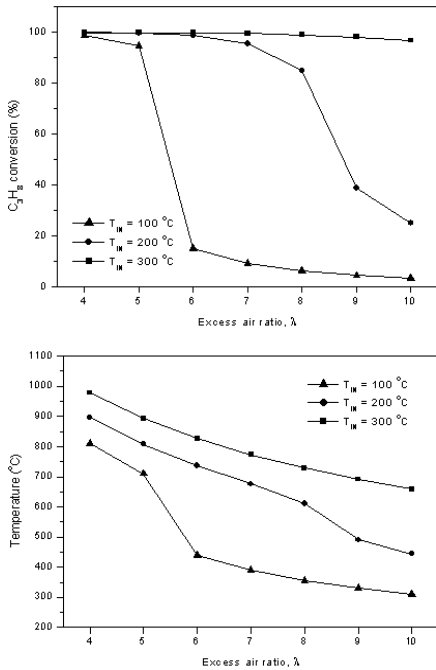


Fig. 3 Effects of excess air ratio on the (a) C₃H₈ conversion and (b) outlet temperature

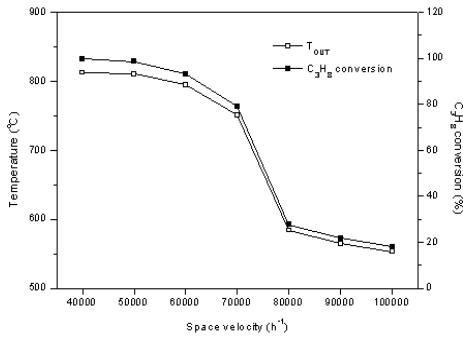


Fig. 4 Effects of space velocity on the temperature and C₃H₈ conversion

3.4 공간속도에 따른 촉매연소 특성

공간속도는 반응기의 체적에 대한 공급된 가스의 체적 유량의 비로써, 연소기 내부에 공급된 유량의 체류 시간을 나타낸다. Fig. 4는 공간속도 변화에 따른 C₃H₈ 전환율과 출구온도의 변화를 나타낸다. 입구 온도가 100°C일 때, 공간속도가 증가할수록 촉매 영역에서 연료의 체류시간이 감소하기 때문에 C₃H₈ 전환율과 출구온도

모두 감소하며, 특히 공간속도가 80,000hr⁻¹ 일 때, 전환율이 가장 빠르게 감소함을 볼 수 있다.

4. 결 론

본 연구에서는 프로판의 촉매연소 특성을 고찰하기 위하여 수소 공급량, 과잉공기비, 그리고 공간속도의 변화에 따른 전환율과 출구온도 특성을 분석하였으며, 그 결과를 아래와 같이 정리하였다.

- (1) 충분한 예열온도가 확보되어야 연료의 완전한 반응이 이루어지며, 사용된 촉매 성분에 따라 일정한 반응개시 온도가 존재한다.
- (2) H₂ 공급량이 증가함에 따라 H₂ 연소로 인해 촉매부 온도가 증가하기 때문에 연료 전환율과 출구 온도 모두 증가한다.
- (3) 과잉공기비의 증가에 따라서 연료성분의 전환율과 출구온도가 감소한다.
- (4) 공간속도가 증가할수록 체류시간이 감소하기 때문에 높은 공간속도에서 연료성분은 완전히 반응하지 못한다.

참 고 문 헌

1. Cocchi, S., Nutini, G., Spencer, M. J., and Nickolas, S. G., "Catalytic Combustion System for a 10MW Class Power Generation Gas Turbine," *Catalysis Today*, vol. 117, 2006, pp.419~426
2. Hwang, C. H., Lee, C. E., and Lee, K. O., "Numerical investigation on combustion characteristics of methane in a hybrid catalytic combustor," *Fuel*, vol. 83, 2004, pp.987~996
3. Dalla Betta, R. A., and Rostrup-Nielsen, T., "Application of Catalytic Combustion to a 1.5 MW Industrial Gas Turbine," *Catalysis Today*, vol. 47, 1999, pp.369~375
4. Carroni, R., Schmidt, V., and Griffin, T., "Catalytic Combustion for Power Generation," *Catalysis Today*, vol. 75, 2002, pp.287~295