

대향류 확산 화염에서 에틸렌-프로판 혼합 연료의 매연 생성 상승 효과

Synergistic Effect of Ethylene-Propane Mixture on Soot Formation in Counterflow Diffusion Flame

황 준 영, 정 석 호
서울대학교 기계공학과

요약

대향류 확산 화염의 매연 생성 특성에 대한 실험적 연구가 수행되었으며, 그 결과 에틸렌(C_2H_4)-프로판(C_3H_8) 혼합 연료의 경우 매연 생성 상승 효과 (synergistic effect)가 관측되었다. 프로판과 에틸렌의 PAH 생성 양상이 상이하게 나타났으며, 소량의 프로판을 에틸렌 확산 화염에 첨가할 경우 순수 연료에 비하여 매연 및 PAH (다중 고리 방향족 탄화수소; polycyclic aromatic hydrocarbon) 생성이 증대되었다. 단조적으로 변화하는 아세틸렌(C_2H_2) 농도와 단열 화염 온도를 고려할 때, 이러한 결과는 HACA (H-abstraction- C_2H_2 -addition) 반응만으로는 확산 화염에서의 매연 발생 및 성장을 설명할 수 없음을 의미한다. 수치해석과 실험 결과의 비교로부터 초기 PAH의 생성 과정을 규명하였으며, 이 과정에서 C3 화학종의 재결합 반응이 매우 중요함을 확인할 수 있었다. 또한, 이러한 C3 화학종과 C2 화학종의 상호 보완적인 역할에 의하여 에틸렌-프로판 혼합 연료에서 매연 생성이 증대됨을 밝혔다.

1. 서론

매연 형성 과정을 상세히 규명하기 위하여 많은 연구가 수행되어 왔으며, 그 결과 온도, 압력 및 연료 분자 구조 등의 주요 인자가 화염 중의 매연 생성에 미치는 영향에 대하여 커다란 연구 성과가 있었다 [1, 2]. 이러한 인자들 중에서도 연료의 구조적 특성이 매연 입자의 형성에 중요한 영향을 미침이 증명되었으며 [3, 4], 다중 고리 방향족 탄화수소 (polycyclic aromatic hydrocarbon; 이하 PAH) 화학종이 매연 입자의 이전 물질이라는 점은 일반적으로 널리 인식되어 있다. 아울러, 매연 생성에 대한 아세틸렌(C_2H_2)의 역할 또한 많은 연구자들에 의하여 강조되어 왔다 [5-7]. 이처럼, PAH와 매연 입자의 생성 및 성장은 C_2H_2 분자가 중요한 역할을 하는 HACA (H-abstraction- C_2H_2 -addition) 과정에 기초하여 해석되어 왔다 [8, 9]. 온도가 높아지면 이러한 HACA 반응이 활발해 지므로, 매연의 생성 및 성장 과정이 산화 과정과 분리되는 확산 화염의 경우, 화염 온도가 증가하면 매연 발생률이 증가한다.

한편, 플러그 플로우 리액터 (plug flow reactor) 및 충격관 (shock tube)을 이용한 실험을 통하여 탄화수소계 연료의 혼합이 매연 생성에 미치는 영향에 대한 연구가 수행된 바 있다 [10-12]. 이들중 일부는 연료 혼합에 의한 매연 생성 상승 효과에 대하여 언급한 바 있으며, 이는 아세틸렌의 역할만으로는 매연 입자의 초기 발생 과정을 포함한 전반적인 매연 형성 과정을 설명할 수 없

음을 의미한다.

최근에 몇몇 연구자들이 프로파길(C_3H_3)이나 알렌(C_3H_4) 화학종들이 PAH의 초기 고리 형성 과정에 매우 중요한 역할을 할 수 있으며 C_2H_2 는 주로 PAH와 매연의 성장에만 관련이 있다는 주장을 제기하였다 [13-15]. 또한, 기존의 HACA 메커니즘에 의거하여 계산된 매연 입자의 초기 발생률이 일반적으로 실험 결과에 비하여 과소평가 되고 있다. 일각에서는 이를 설명하기 위해, HACA에 의한 PAH로부터 매연 입자로의 화학적 성장/전환과 더불어 PAH 분자들의 상호 응집에 의한 매연 입자 형성의 중요성을 주장하였다 [15-17]. 이와 관련하여, 에틸렌-공기 예혼합 화염을 이용한 실험에서, PAH 분자는 매연 입자의 초기 발생과 직접적인 연관성이 있는 반면 C_2H_2 의 경우는 PAH 분자들이 소모되기 전까지는 매연 입자 발생에 간접적으로 연관되어 있음이 제시되기도 하였다 [5].

그러나 PAH나 C_2H_2 등이 확산 화염의 매연 발생에 미치는 상대적인 영향에 관한 직접적이고 구체적인 증거 자료는 매우 제한되어 있는 실정이다. 따라서 본 연구는 연료의 분자 구조가 매연 생성에 미치는 영향을 규명하기 위하여 에틸렌 연료에 프로판을 첨가한 대향류 확산 화염을 대상으로 매연 생성 특성을 조사하고자 한다.

2. 실험 및 수치해석 방법

연료의 분자 구조가 매연 생성에 미치는 영향을 규명하기 위하여 대향류 확산 화염에 대한 연구가 수행되었으며 에틸렌-프로판 혼합 연료에 대한 실험 결과를 순수 에틸렌 및 순수 프로판 화염의 경우와 비교하였다.

대향류 버너의 노즐 출구 직경 및 노즐간 간격은 각각 14.2 mm이다. 노즐은 균일 유동을 얻기 위하여 확대-수축형으로 설계하였으며 수축 비는 80:1이다. 연료는 C.P. 등급의 에틸렌과 프로판 또는 이들의 혼합물이며, 연료와 산화제는 필요에 따라 적절한 비율의 질소로 희석하였다. 모든 대향류 버너에 대하여, 연료 및 산화제의 출구 유속은 화염 스트레치(stretch) 효과를 동일하게 하기 위하여 19.5 cm/s로 고정하였다.

2차원 레이저 도플러 유속계 (laser Doppler velocimetry; LDV)를 사용하여 대향류 확산 화염에서의 입자 유속을 측정하였다. 이러한 LDV 측정 결과로부터 입자 정체면을 결정하였다.

대향류 확산 화염에서의 매연 입자의 부피 분율, 평균 크기 및 수밀도를 구하기 위하여 514.5 nm 아르곤-이온 레이저를 이용한 레이저 광 산란/소멸 법을 사용하였다. 가시광선 영역의 레이저 형광 법을 이용하여 상대적인 PAH 농도를 측정하였다. 이때의 아르곤-이온 레이저의 여기광은 488 nm을 사용하였고 형광 신호는 514.5 nm에서 검출되었다. 이러한 형광 신호는 아세나프틸렌을 포함한 2 또는 3 중 고리 PAH의 농도에 비례한다 [19]. 매연 입자에 의하여 감쇠된 산란 및 형광 신호는 측정된 소멸 계수를 이용하여 보정하였다.

실험 결과 해석에 대한 이해를 돕기 위하여 대향류 확산 화염에 대한 수치해석이 수행되었다. 이를 위하여 C3 메커니즘까지 고려하고 있는 Frenklach와 Wang에 의해 개발된 화학 반응 모델 [20]을 수정하여 사용하였다. C3 메커니즘까지 고려하고 있는 이 반응 모델은 42 화학종과 233 반응 스텝을 포함하고 있으며, 이 모델의 기초 반응을 포함한 C1 및 C2 반응 메커니즘은 GRI 메커니즘과 동일하다 [21]. 열역학적 물성치 및 전달 물성치는 각각 CHEMKIN II [22]와 TRANSPORT [23] 패키지로부터 계산하였다. 본 연구에서 사용한 화학 반응 메커니즘은 매연이나 PAH의 생성 및 산화를 고려하지는 않는다. 그러나 총 매연 생성량이 전체 연료의 1% 미만임을 감안할 때 이로부터 구한 C_2H_2 와 C_3H_3 및 온도는 신뢰성이 있다고 판단된다.

3. 결과 및 검토

3.1. 대항류 확산 화염에서의 매연 입자의 거동

대항류 확산 화염에서의 매연 생성 특성은 화염면과 입자 정체면의 상대적인 위치에 따라 크게 두가지로 분류될 수 있다 (매연 생성/산화 화염과 매연 생성 화염) [18]. 매연 생성 화염은 화염이 정체면을 기준으로 산화제 측에 위치하는 경우이다. 이 경우, 매연은 화염면을 기준으로 연료 측에서 형성되므로, 발생한 매연 입자는 유동장에 의하여 정체면을 향해 이송되며 화염으로부터 멀어진다. 따라서, 매연 산화 과정은 이 경우에 존재하지 않는다. 매연 생성/산화 화염은 화염이 정체면을 기준으로 연료 측에 위치하는 경우이다. 이 경우, 발생한 매연 입자는 화염을 향하여 이송하며, 매연 입자가 화염을 통과하면서 매연 입자의 산화가 이루어진다.

에틸렌 연료를 사용하여 전형적인 매연 생성/산화 화염과 매연 생성 화염의 매연 및 PAH 분포를 비교하여 보았다. 연료와 산화제는 원하는 농도를 얻기 위하여 질소로 적절히 희석되었다. Figure 1(a)에는 $(X_{C_2H_4,o}, X_{O_2,o}) = (0.25, 0.9)$ 인 매연 생성/산화 화염에서의 매연 부피 분율 ϕ 와 PAH 형광 Q_f 의 분포를 나타내었다. 여기서 X 는 몰분율을 나타내며, 하첨자 o 는 노즐 출구 조건을 의미한다. 수치해석적으로 구한 C_2H_2 , C_3H_3 , O_2 및 OH 농도를 함께 나타내었다.

이 경우는 매연 지역이 정체면 및 화염면으로부터 연료 측에 위치한 매연 생성/산화 화염에 해당한다. 일단 발생한 매연 입자는 정체면, 즉, 고온 지역으로 이송된다. 결국 매연 입자는 O_2 나 OH 가 풍부한 지역을 통과하며 산화된다.

노즐로부터 공급된 에틸렌 연료는 온도가 증가하면서 열분해된다. 약 $Z = 4$ mm 에서부터 C_2H_2 및 C_3H_3 의 농도가 증가함에 따라 PAH 신호 Q_f 가 증가하기 시작한다. 약 $Z = 4.8$ mm 지점에서부터 매연이 증가하기 시작하며, 이로 인해 Q_f 는 약간 감소한다. 이는 이 지역의 온도가 높기 때문에 PAH 생성물에 비하여 매연 입자로의 전이에 따른 PAH 감소율이 더 크기 때문이다. 이후에, $Z = 5.2$ mm 근처에서부터는, 매연 입자가 OH 라디칼이나 O_2 에 노출됨에 따라 매연 입자가 산화되면서, 매연 부피분율이 감소하기 시작한다.

$(X_{C_2H_4,o}, X_{O_2,o}) = (1.0, 0.24)$ 인 경우에는, Figure 1(b)에 나타낸 바와 같이, 매연 생성 구조가 전혀 다르다. 이러한 매연 생성 화염의 경우, 매연 발생 지역이 정체면으로부터 산화제 측에 존재하게 된다. 이 경우, 화염면과 정체면 사이에 위치한 매연 발생 지역의 유동장은 연료 측을 향하게 된다. 따라서 발생한 매연 입자는 화염면으로부터 멀어지게 된다. 결과적으로 매연 입자는 산화 과정을 거치지 않고 정체면을 따라 외기로 배출되며, 매연 입자는 정체면으로 이송되면서 계속 성장하므로 정체면 근처에서 매연 부피분율이 최댓값을 갖게 된다.

3.2. 에틸렌-프로판 혼합 연료의 매연 생성 상승 작용

C2 화학종과 C3 화학종이 매연 생성에 미치는 영향을 규명하기 위하여 에틸렌, 프로판 및 이들의 혼합물에 대하여 대항류 확산 화염에서의 매연 생성 특성을 관찰하였다.

화염이 정체면으로부터 산화제 측에 존재하는 매연 생성 화염의 경우 ($X_{F,o} = 1.0, X_{O_2,o} = 0.24$), 다양한 프로판 비율 x 에 대하여 입자 속도, 온도 및 중요 화학종의 분포를 Figure 2에 나타내었다 여기서 프로판 비율 x 는 다음과 같이 정의된다.

$$\chi = \dot{m}_{C,P} / \dot{m}_{C,F} \quad (1)$$

이때 $\dot{m}_{C,P}$ 와 $\dot{m}_{C,F}$ 는 각각 프로판의 탄소 질량 유량 및 혼합 연료의 전체 탄소 질량 유량을 나타낸다.

이 경우, 매연 생성 특성은 화염면과 정체면의 상대적인 위치에 크게 영향을 받게 되므로 [18, 24], Figure 2는 아래와 같이 정의된 상대 거리 ζ 의 함수로 표시되었다

$$\zeta = (Z - Z_S) / (Z_{T,max} - Z_S) \quad (2)$$

여기서, Z_S 와 $Z_{T,max}$ 는 각각 입자 정체면의 위치 및 최고 온도 지점의 위치를 의미한다. 입자 정체면과 유체 정체면의 위치가 서로 다른 이유는 온도 그래디언트에 의한 열 영동 효과 (thermophoretic effect)에 기인한다 [18]. 이 그림으로부터, 비록 온도 분포는 프로판 비율이 증가함에 따라 조금씩 감소하지만, ζ 좌표계를 이용함으로써 전반적인 입자 속도 및 온도 분포가 만족스럽게 표준화됨을 알 수 있다.

PAH 및 매연 입자의 발생 및 성장은 C_2H_2 분자가 중요한 역할을 하는 HACA 반응에 기초하여 설명되어 왔다 [8]. 또한, 대개의 경우, C_2H_2 농도가 증가하면 매연 성장뿐만 아니라 매연 입자의 초기 발생 역시 증대됨이 알려져 있다 [6, 7]. 한편, 유동 반응기 (flow reactor) [13, 14] 및 평면 화염 버너 [15]를 이용한 최근의 연구 결과에 따르면 C_3H_3 분자의 재결합 과정에 의한 초기 고리 생성 반응이 매우 중요한 PAH 형성 루트임이 밝혀지고 있다.

이러한 관점에서, 수치해석으로 구한 C_2H_2 및 C_3H_3 의 농도를 Figure 2에 함께 나타내었다. 이 그림에서 온도와 C_2H_2 농도는 프로판 비율 χ 가 증가할수록 감소하지만 C_3H_3 농도는 반대로 증가한다. 매연 생성 전반에 관하여 HACA 반응에 의해 지배된다면 화염 온도와 C_2H_2 의 농도가 큰 에틸렌 화염의 매연 생성률이 가장 클 것이다. 한편, C3 화학종의 역할이 중요하다면, 프로판 비율의 증가에 따른 C_3H_3 의 증가는 매연 생성에 영향을 줄 것이다.

이러한 현상을 이해하기 위하여, Figure 3에 측정된 최대 매연 부피분율 ϕ_{max} 과 최대 PAH 형광 강도 $Q_{f,max}$ 를 프로판 비율의 함수로 나타내었다. 순수 프로판의 PAH 농도가 순수 에틸렌 화염의 경우보다 약간 크게 나타났으나, 매연 발생량은 에틸렌 화염의 경우가 프로판 화염의 경우에 비하여 매우 컸다. 이로부터 PAH로부터 매연 입자로의 전환 과정 및 매연 입자 성장 과정에서 C_2H_2 화학종의 역할이 매우 크다는 사실과 매연 및 PAH 생성 메커니즘이 서로 다르다는 사실을 확인할 수 있었다.

한편, 에틸렌에 프로판을 소량 첨가하면, 매연 및 PAH의 생성이 크게 증가하였다. 따라서, 단조적인 온도 감소에도 불구하고 매연 발생량이 증가한 것은 소량의 프로판을 에틸렌에 첨가하였을 때 특정한 화학적인 상승 효과가 발생함을 의미하며, 결국 C_2H_2 농도만에 의존한 매연 및 PAH 생성 과정 해석은 부적합하다는 것을 의미한다. 특히 이러한 혼합에 의한 상승 작용은 매연에 비하여 PAH의 경우에 더 두드러졌으며, 이로부터 에틸렌-프로판 혼합에 직접적인 영향을 받는 과정은 PAH 생성 과정임을 짐작할 수 있다.

따라서, 본 연구의 결과는 C_3H_3 재결합에 의한 벤젠 고리 형성 반응을 통하여 C_3H_3 분자가 PAH 형성에 미치는 영향의 중요성에 대하여 강하게 입증하고 있다. 그러나, C_3H_3 은 C_2H_2 와 상호 보완적인 관계가 있는 것으로 판단된다. 즉, PAH로부터 매연 입자로의 전환이나 매연 입자

의 표면 성장과정 등은 HACA 반응이 여전히 중요한 역할을 하고 있다는 점이다. 따라서 C_2H_2 농도가 충분하면, HACA 반응에 의한 PAH 형성 과정은 초기의 PAH 또는 단일 고리 분자의 형성 반응에 의해 지배된다. 반면에, C_2H_2 농도가 충분치 못하면, 초기의 PAH는 더 큰 PAH나 매연 입자로 성장하는데 어려움을 겪게 된다.

또한, C_3H_3 이 초기 매연 형성에 직접적으로 관계되어 있음을 고려할 때, Figure 3에서 보이는 PAH와 매연 생성량의 비선형적인 양상은 이러한 C_3H_3 와 C_2H_2 의 상호 보완적인 역할을 토대로 설명될 수 있다. 순수 에틸렌 화염의 경우, 상대적으로 낮은 C_3H_3 농도는 초기 PAH 고리 형성을 감소시킨다. 이때 소량의 프로판을 혼합하면 초기 PAH 농도가 증가하는 반면 C_2H_2 의 농도는 크게 줄지 않으며, 따라서 C_3H_3 와 C_2H_2 의 상호작용이 매연 발생량의 증대를 초래하게 된다. 프로판 비율이 더 증가하면 C_2H_2 의 농도가 급격히 감소하면서 매연 발생량도 함께 감소하게 된다.

이러한 에틸렌-프로판 연료 혼합에 의한 매연 생성 상승 효과는, 화염이 정체면을 기준으로 연료 측에 존재하는 매연 생성/산화 화염의 경우($X_{F,o} = 0.25$, $X_{O_2,o} = 0.9$)에도 나타난다. Figure 4에서 볼 수 있듯이, 에틸렌에 소량의 프로판을 첨가하면 매연 생성이 증대된다. 그러나 이 경우, 프로판 비율 χ 가 증가함에 따라 화염이 점차 산화제 측으로 이동하게 되며, $\chi = 0.5$ 이상에서는 입자 정체면이 매연 지역 내에 존재하게 된다. 이때 화염면은 정체면으로부터 산화제 측에 존재하며 또한 화염면과 정체면이 가까우므로, 화염면에서 생성된 매연 입자가 산화되지 않고 고온의 정체면에 머무르면서 크게 성장한다. 따라서 프로판 비율이 0.5보다 커지면, 매연 생성 화염으로 화염 구조가 바뀌면서, 매연 생성률이 크게 증가한다.

3.3. 매연 생성/산화 화염에서의 PAH 생성 메커니즘

에틸렌-프로판 혼합 연료의 매연 생성 증대 효과로부터 초기 PAH 고리 생성과정에서 C3 화학종의 역할이 매우 중요함을 알 수 있었다. 이러한 관점에서 초기 PAH 생성 과정에서 C3 및 C2 화학종의 역할을 좀더 구체적으로 알아보기 위하여 순수 에틸렌 및 순수 프로판 연료의 매연 생성/산화 화염을 대상으로 매연 및 PAH의 분포를 Figure 5에 나타내었다. Figure 5(a)에서 나타난 ($X_{C_2H_4,o} = 0.28$, $X_{O_2,o} = 0.9$)의 에틸렌의 경우와 Figure 5(b)에서 나타난 ($X_{C_3H_8,o} = 0.23$, $X_{O_2,o} = 0.9$)의 프로판의 경우, 전반적인 매연 및 PAH 생성량은 서로 비슷하게 나타났으나, PAH의 분포 양상은 두 가지의 경우가 크게 달랐다.

에틸렌의 경우, 저온 지역의 PAH 분포에 비하여 고온지역의 PAH 농도가 매우 크게 증가한 데 반하여, 프로판의 경우는 저온 지역의 농도가 에틸렌에 비하여 매우 큰 반면, 고온 지역에서의 PAH 농도 증가는 매우 미약하게 나타났다. PAH의 농도 분포의 상사점이 두 개로 나타나는 것은, 부분적으로 매연 입자가 발생이 활발히 진행되면서 PAH가 소모되는 데에도 그 이유가 있겠으나, 보다 근본적인 원인은 서로 다른 PAH 생성 메커니즘이 존재하기 때문으로 판단된다.

PAH 생성 메커니즘에 대하여 자세히 알아보기 위하여 Figure 6에 각각의 경우에 대한 PAH 생성률 \dot{Q}_f 을 나타내었다. 이때 PAH 생성률 \dot{Q}_f 는 다음과 같이 구할 수 있다.

$$\dot{Q}_f = \frac{dQ_f}{dt} = \frac{1}{U_g} \frac{dQ_f}{dZ} \quad (3)$$

여기서 U_g 는 기체 성분의 속도이다. PAH 생성률은 $Z=4$ 지역에서 증가하기 시작하며, $Z=4.5$ 근처에서 다시 감소한다. 이러한 PAH의 감소는 PAH가 매연 발생과정에서 소모되기 때문이다.

매연 생성이 증가하며 감소하던 PAH 생성률은 고온 지역에서 다시 증가한다.

지금까지의 연구결과 중요한 벤젠(C₆H₆) 고리 형성 메커니즘은 일반적으로 2 가지가 제안되었다 [6-8, 13-15]. 그 하나는 C₂-C₄-C₆ 성장 메커니즘이고 다른 하나는 C₃H₃의 재결합 반응이다. 이 두 가지 C₆H₆ 고리 생성 메커니즘을 고려할 경우 초기 PAH 생성률은 다음과 같이 간단하게 모델링할 수 있다.

$$\frac{d\dot{A}_1}{dt} = \omega_{C_3H_3} + \omega_{C_2H_2} - \omega_- \quad (4)$$

여기서 \dot{A}_1 은 초기 C₆H₆ 고리를 의미하고, $\omega_{C_3H_3}$ 및 $\omega_{C_2H_2}$ 는 각각 C₂H₂ 및 C₃H₃에 의한 생성률을 나타내며, ω_- 는 더 큰 PAH 및 매연의 성장 또는 화염에서의 산화에 의한 소멸률을 나타낸다.

이때, $\omega_{C_3H_3}$ 및 $\omega_{C_2H_2}$ 에 의한 생성률은 다음과 같은 형태로 표시할 수 있다.

$$\omega_{C_3H_3} \approx \alpha (\rho_g Y_{C_3H_3})^2 \quad (5)$$

$$\omega_{C_2H_2} \approx \beta \rho_g Y_{C_2H_2} \exp\left(\frac{-E_A}{RT}\right) \quad (6)$$

여기서 α 와 β 는 반응 상수이고 ρ_g 및 Y_i 는 각각 기체 밀도 및 i 화학종의 질량분율이다. 식 (5)와 (6)에 의하여 계산된 초기 방향족 고리 생성률을 Figure 6에 함께 나타내었다.

Figure 6에서 볼 수 있듯이, 위와 같은 모델링으로부터 구한 방향족 고리 생성률과, 실험에서 구한 PAH 생성률이 매우 유사하게 나타났다. 이때, 식 (6)의 활성화 에너지 E_A 의 값은 실험과의 비교를 통하여 약 10² kcal/mole의 매우 큰 값으로 나타났으며 이로부터, C₂ 화학종에 의한 PAH 생성은 온도가 매우 높은 극히 제한된 지역에서만 중요함을 알 수 있다. 또한 매연 생성에 직접적인 역할을 하는 초기 PAH 생성 메커니즘은 C₃ 재결합 반응에 의한 것임을 알 수 있다. 이러한 결과로부터, 앞서 에틸렌-프로판 연료의 혼합에 의하여 매연 생성이 증대된 결과와 마찬가지로, 매연 생성 과정에서 C₃ 재결합 반응에 의한 초기 PAH 고리 형성이 매우 중요함을 확인할 수 있었다.

4. 결론

대항류 확산 화염의 매연 생성 특성에 대한 실험적 연구가 수행되었으며, 그 결과 에틸렌-프로판 혼합 연료의 경우 매연 생성 상승 효과가 관측되었다. 소량의 프로판을 에틸렌 확산 화염에 첨가할 경우, C₂H₂ 농도 및 화염 온도의 감소에도 불구하고, 순수 에틸렌 화염의 경우에 비하여 매연 및 PAH 생성이 증대되었다. 이러한 결과는 HACA 반응만으로는 확산 화염에서의 매연 발생 및 성장을 설명할 수 없음을 의미하였다. 매연 생성 지역의 C₂H₂, C₃H₃ 및 온도 분포를 고려할 때, C₂ 화학종에 의한 PAH 및 매연의 성장 과정과 아울러, C₃ 화학종의 재결합 반응을 통한 초기 PAH 고리 생성 과정이 매우 중요함을 확인하였으며, 이러한 C₃ 화학종과 C₂ 화학종의 상호 보완적인 역할에 의하여 에틸렌-프로판 혼합 연료에서 매연 생성이 증대됨을 밝혔다.

또한, 매연 생성/산화 화염의 PAH 분포로부터 C3 화학종 및 C2 화학종에 의한 초기 PAH 생성 메커니즘을 규명하였으며, 이 경우에도, C3 재결합 반응이 매연과 관련된 PAH 생성에 직접적인 영향을 미침을 알 수 있었다.

REFERENCES

1. Glassman, I., *Twenty-Second Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, 1988, pp. 295-311.
2. Haynes, B. S. and Wagner, H. G., *Prog. Energy Combust. Sci.*, 7:229-273 (1981).
3. Gomez, A. and Glassman, I., *Twenty-First Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, 1986, pp. 1087-1095.
4. Gulder, Ö. L., *Combust. Flame*, 88:74-82 (1992).
5. Smedley, J. M., Williams, A., and Bartle, K. D., *Combust. Flame*, 91:71-82 (1992).
6. Leung, K. M., Lindstedt, R. P., and Jones, W. P., *Combust. Flame*, 87:289-305 (1991).
7. Sunderland, P. B. and Faeth, G. M., *Combust. Flame*, 105:132-146 (1996).
8. Frenklach, M. and Wang, H., *Twenty-Third Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, 1990, pp. 1559-1566.
9. Frenklach, M. and Wang, H., in *Soot Formation in Combustion* (H. Bockhorn Eds.), Springer-Verlag, Berlin, 1994, pp. 165-192.
10. McKinnon, J. T. and Howard, J. B., *Twenty-Fourth Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, 1992, pp. 965-971.
11. Tesner, P. A. and Shurupov, S. V., *Combust. Sci. Tech.*, 92:61-67 (1993).
12. Frenklach, M., Yuan, T., and Ramachandra, M. K., *Energy Fuels*, 2:462-480 (1988)
13. Pfefferle, L. D., Bermudez, G., and Boylr, J., in *Soot Formation in Combustion* (H. Bockhorn Eds.), Springer-Verlag, Berlin, 1994, pp. 25-49.
14. Stein, S. E., Walker, J. A., Suryan, M. M., and Fahr, A., *Twenty-Third Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, 1990, pp. 85-90.
15. Senkan, S and Castaldi, M., *Combust. Flame*, 107:141-150 (1996).
16. Harris, S. J. and Weiner, A. M., *Twenty-Second Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, 1988, pp. 333-342.
17. Miller, J. H., *Twenty-Third Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, 1990, pp. 91-98.
18. Kang, K. T., Hwang, J. Y., Chung, S. H., and Lee, W., *Combust. Flame*, 109:266-281 (1997).
19. Prado, G., Garo, A., Ko, A., and Sarofim, A., *Twentieth Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, 1984, pp. 989-996.
20. Wang, H. and Frenklach, M., to appear in *Combust. Flame*, (1997).
21. Frenklach, M., Wang, H., Goldenberg, M., Smith, G. P., Golden, D. M., Bowman, C. T., Hanson, R. K., Gardiner, W. C. and Lissianski, V., GRI Technical Report No. GRI-95/0058, 1995
22. Kee, R. J., Ruply, F. M., and Miller, J. A., Sandia National Laboratories Report No. SAND

89-8009, 1989.

23. Kee, R., Warnatz, J., and Miller, J. A., Sandia National Laboratories Report No. SAND 83-8209, 1983.

24. Zhang, C., Atreya, A., and Lee, K., *Twenty-Fourth Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, Pittsburgh, 1992, pp. 1049-1057.

Figure Captions

Figure 1. Profiles of soot volume fraction, PAH fluorescence, and C_2H_2 , C_3H_3 , O_2 and OH concentrations in counterflow ethylene flames; (a) soot formation/oxidation flame and (b) soot formation flame.

Figure 2. Profiles of particle velocities, temperatures and mole fractions of C_2H_2 and C_3H_3 for various ethylene-propane mixtures in soot formation flame.

Figure 3. Maximum soot volume fraction and maximum PAH fluorescence as a function of propane ratio in soot formation flame

Figure 4. Maximum soot volume fraction as a function of propane ratio in soot formation /oxidation flame

Figure 5. Profiles of PAH fluorescence and soot volume fraction in soot formation/oxidation flame for various fuel exit concentration of (a) ethylene and (b) propane

Figure 6. Profiles of measured PAH formation rate and calculated initial ring formation rate in soot formation/oxidation flame for various fuel exit concentration of (a) ethylene and (b) propane

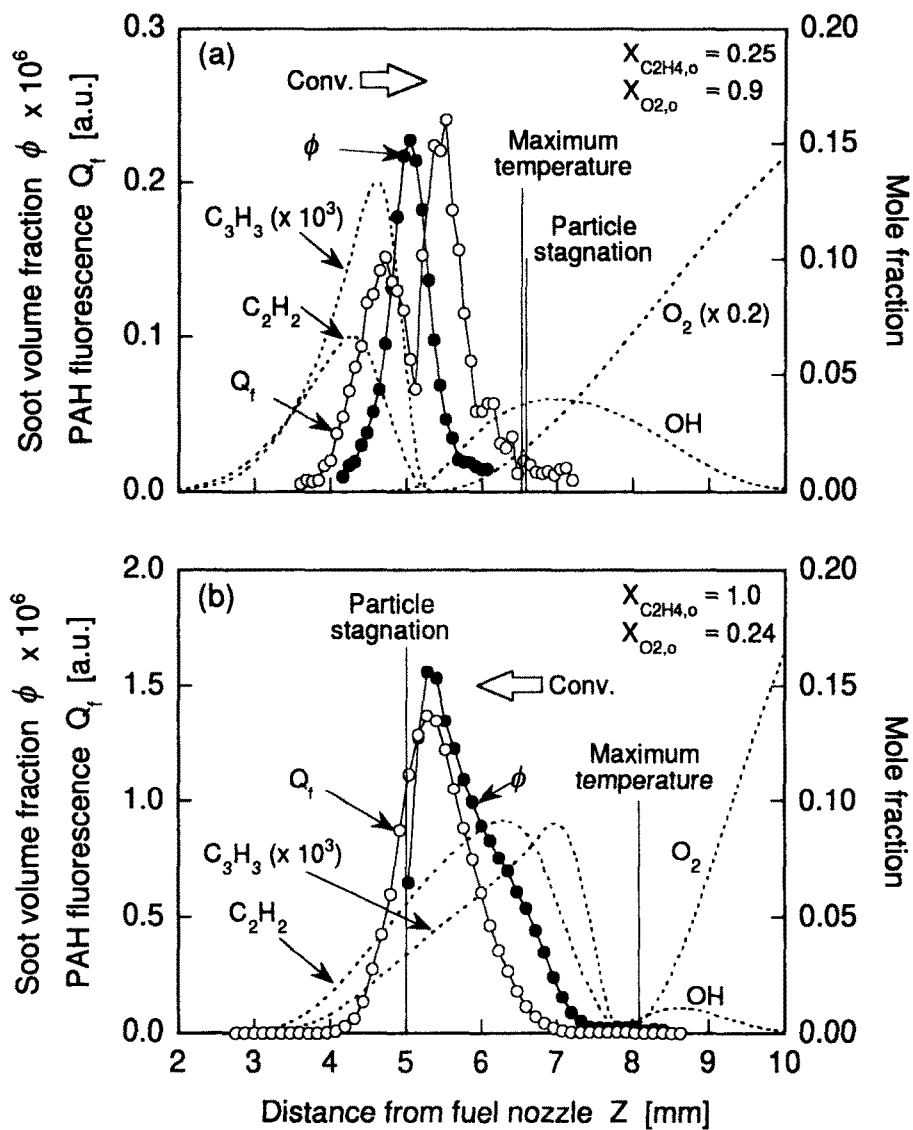


Figure 1 Profiles of soot volume fraction, PAH fluorescence and species concentration in counterflow diffusion flame
 (a) soot formation/oxidation flame
 (b) soot formation flame

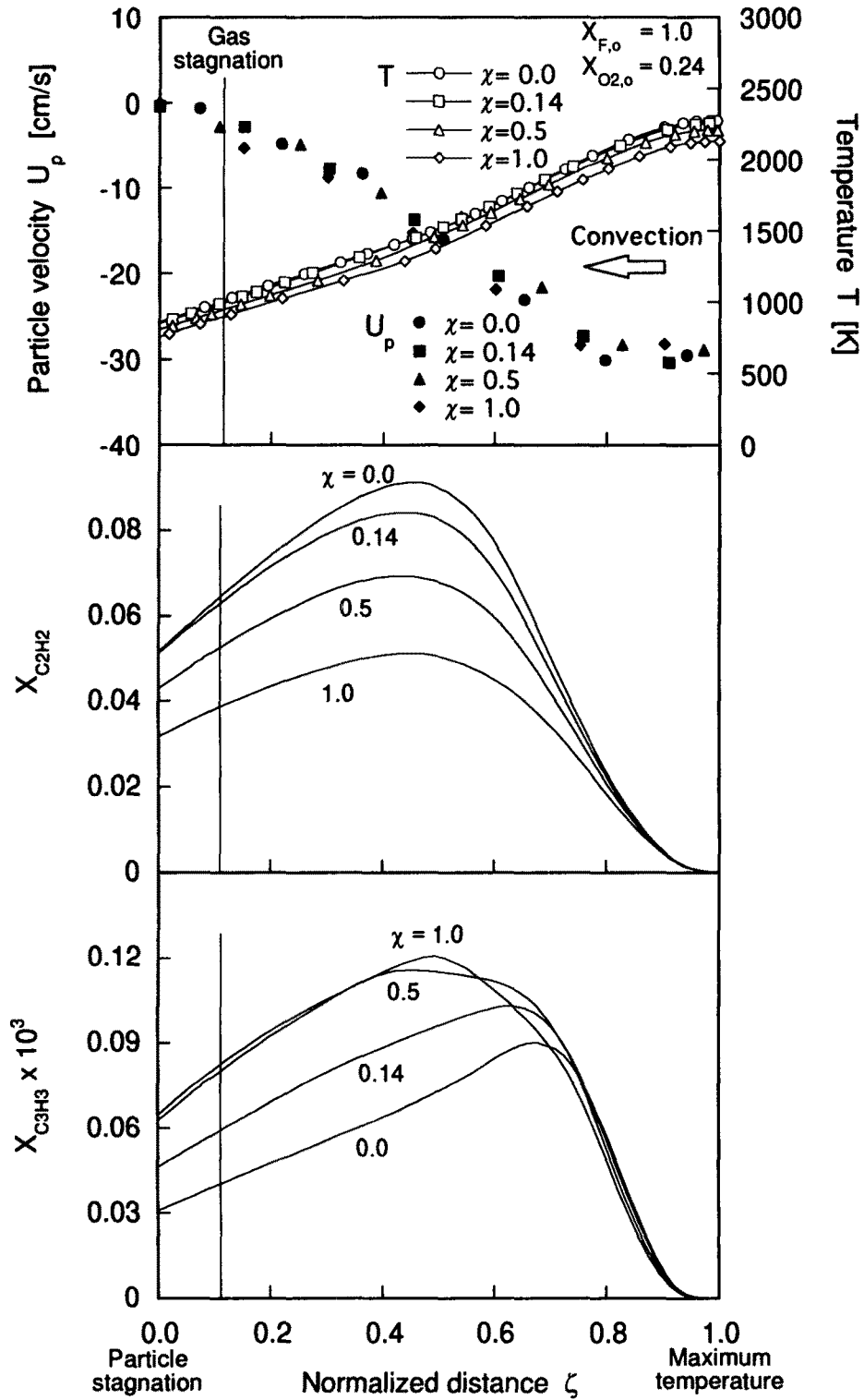


Figure 2 Profiles of particle velocity, temperature and C_2H_2 and C_3H_3 concentrations for various ethylene-propane mixtures in soot formation flame

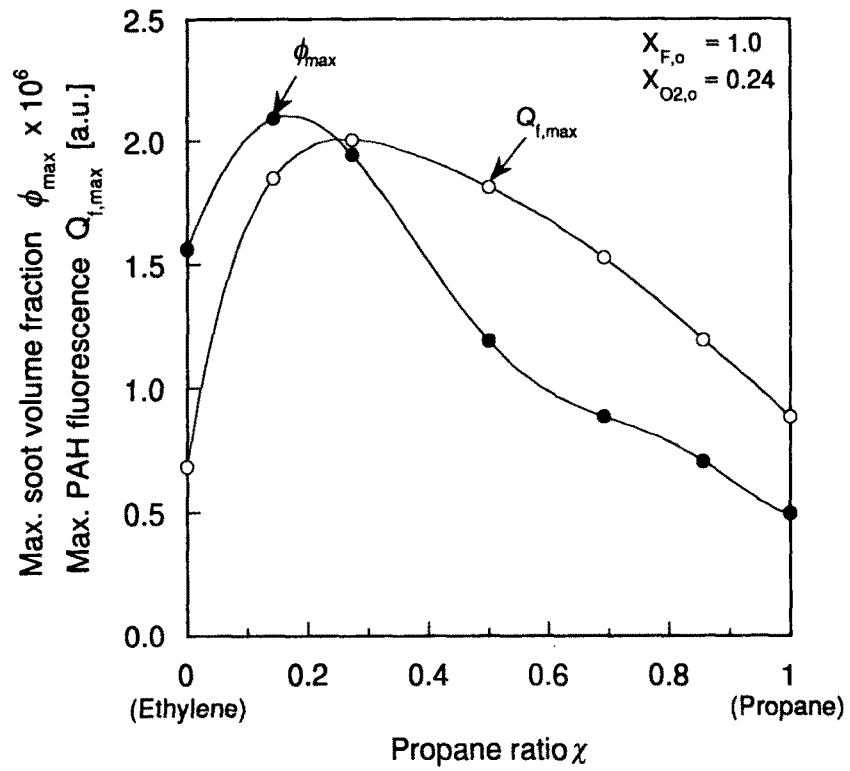


Figure 3 Maximum soot volume fraction and maximum PAH content for various ethylene-propane mixtures in soot formation flame

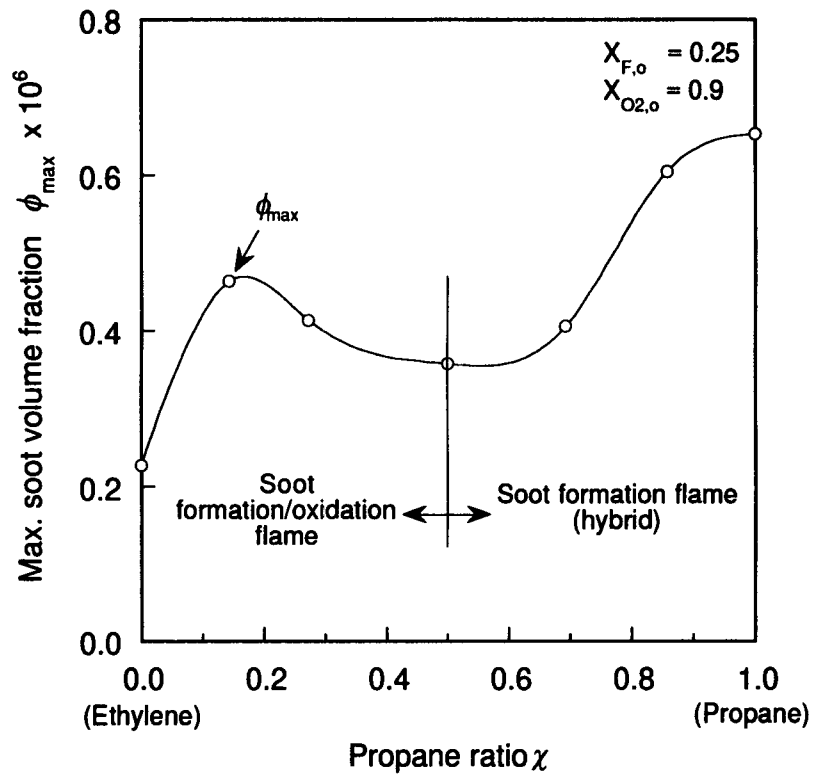


Figure 4 Maximum soot volume fraction for various ethylene-propane in soot formation/oxidation flame

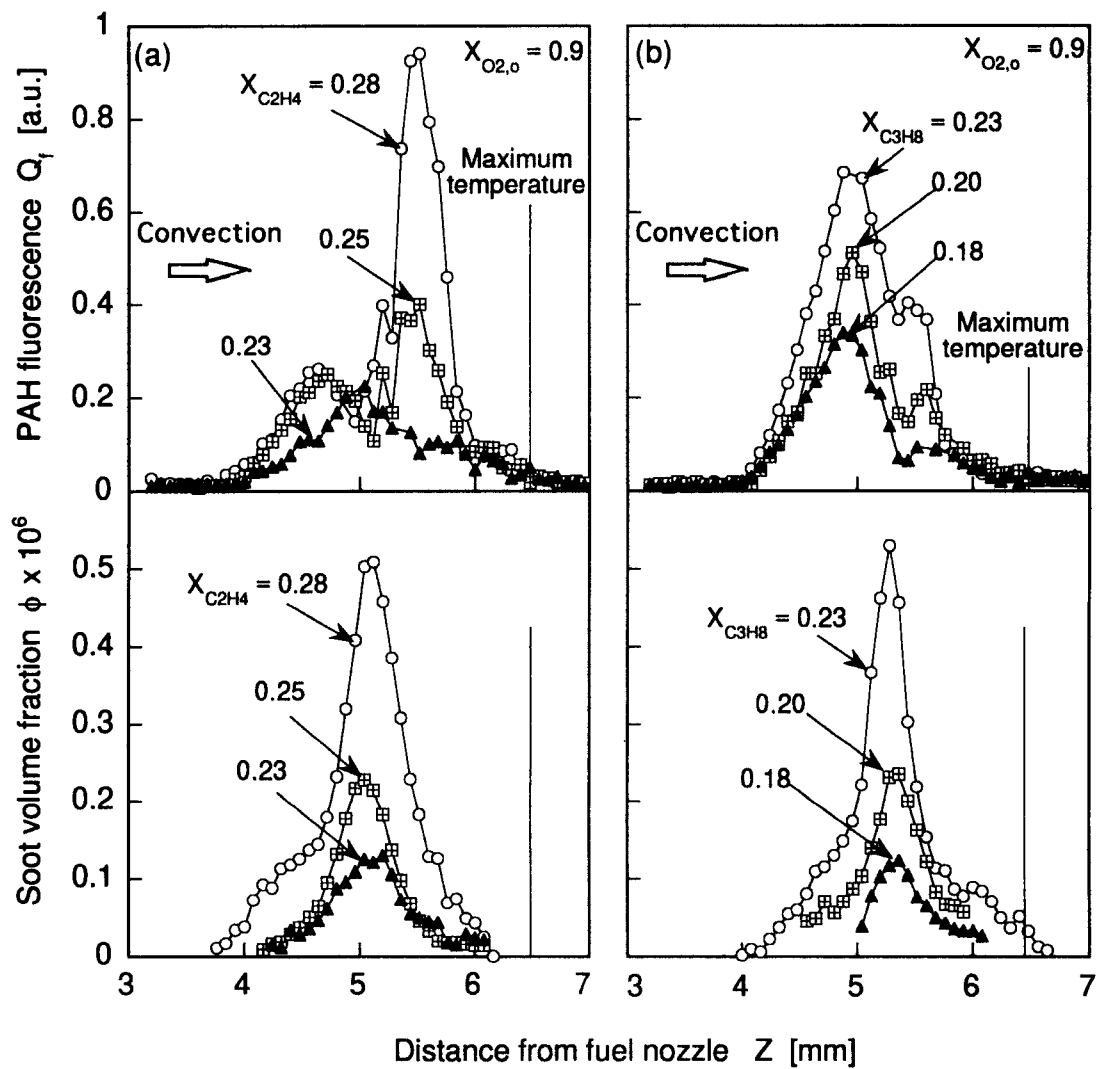


Figure 5 Profiles of PAH fluorescence and soot volume fraction in soot formation/oxidation flame
 (a) ethylene
 (b) propane

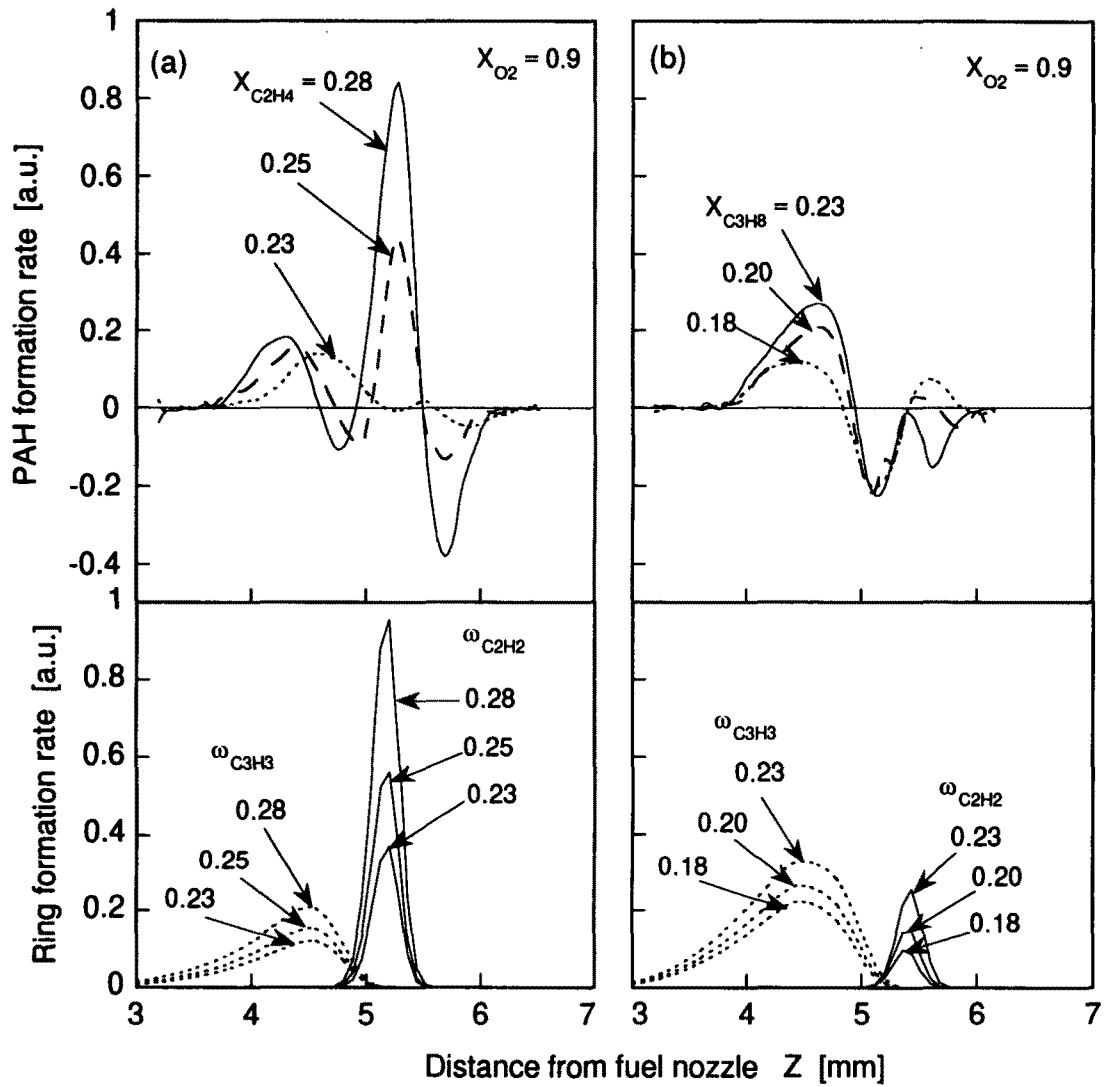


Figure 6 Profiles of PAH formation rate and initial ring formation rate in soot formation/oxidation flame
 (a) ethylene
 (b) propane