

층상구조 에틸렌/프로판 동축류화염의 매연 생성 특성

이원남* · 구본승*

Soot Formation Characteristics of Concentric Ethylene/Propane Co-flow Diffusion Flames

Wonnam Lee, Bon-Seung Koo

Key Words: Soot Formation, Diffusion flame, Synergistic Effect.

Abstract

The soot formation characteristics have been studied experimentally in concentric co-flow ethylene/propane diffusion flames. Comparing to the homogeneously mixed propane/ethylene case, the increase of soot formation is observed when propane is supplied through the outer nozzle, while the decrease is observed when propane is supplied through the inner nozzle. The reaction path of PAHs formed from the pyrolysis process of propane is likely to be responsible to the observed difference. When propane is supplied through the outer nozzle, PAHs formed during the combustion process are easy to be exposed to the oxidation environment; however, when propane is supplied through the inner nozzle, PAHs are not likely to be oxidized and thus get involved in soot formation process. The synergistic effect in ethylene/propane diffusion flames is affected not only by the composition of mixture but also by the way of mixing.

1. 서론

확산화염의 매연생성 특성은 일반적으로 연소과정에서 발생하는 화염 내의 아세틸렌(C_2H_2) 농도가 중요 역할을 하는 HACA(H-Abstraction- C_2H_2 -Addition)

과정에 기초하여 이해되어 왔다.⁽¹⁾ 그러나 최근의 연구에서 에틸렌/프로판 혼합 연료의 조성비 변화에 따라 순수 에틸렌 또는 프로판 화염에서 보다 매연이 증가하는 매연 상승효과가 관찰되었다. 이와 같은 결과는 프로판 첨가에 의한 C_3 화학종이 재결합 과정을 통하여 벤젠고리를 형성하고 매연이전인자인 다중고리 방향족 탄화수소(PAH)의 발생을 증가시켜 매연의 발생상승을 일으키는 것으로

* 단국대학교 기계공학과

이해되고 있다. 또한 최근 화염에서의 매연연구는 아세틸렌에 의한 경로 외에 저온지역에서 프로파길(C_3H_3) 또는 알렌(C_3H_4)과 같은 C_3 화학종의 재결합 반응에 의한 새로운 PAH 형성과정이 있음을 제시하였다.⁽²⁻⁵⁾

현재까지의 연구 결과에 따르면 연료가 열해리 과정을 통하여 분해된 후 매연의 이전인자(precursor)인 PAH를 형성하고, 이 PAH가 HACA 과정에 의하여 매연입자로서 성장하게 된다고 알려져 있다. Hwang 등⁽⁴⁾과 김성기⁽⁵⁾는 에틸렌/프로판 혼합연료에서 조건에 따라 매연생성이 증가하는 synergistic 효과가 있음을 보여주었으며, 소량의 프로판이 에틸렌에 혼합되면 프로판의 연소과정에서 생성되는 많은 량의 PAH가, 에틸렌의 연소과정에서 많이 생성되는 아세틸렌(C_2H_2)과 작용하여 매연생성률이 증가된다고 설명하였다. 이와 같은 국부적인 PAH 농도의 증가 효과를 알아보기 위하여 화염에 벤젠(C_6H_6)을 혼합한 연구가 이루어지고 있으나, 이 경우 에틸렌/프로판 혼합연료에서 나타난 synergistic 효과와 직접적인 비교가 쉽지 않게 된다. 따라서 본 연구에서는 연료로 공급된 에틸렌/프로판의 비율을 일정하게 유지하고, 각 연료의 공급위치를 변경하여 국부적인 PAH 및 아세틸렌(C_2H_2)의 농도를 변화시키면서 화염의 매연생성 특성 변화를 실험적으로 알아보았다.

2. 실험장치 및 방법

에틸렌과 프로판의 연료혼합과 국부적인 연료의 농도변화에 따른 매연생성의 synergistic 효과를 알아보기 위하여 층

상구조의 동축류화염을 도입하였다. 사용된 동심원구조의 동축류 버너는 Fig. 1과 같은 형상을 갖고 있으며, 내경이 8.0 mm인 외부 노즐과 내경이 4.0 mm인 내부 노즐로 구성되어있다. 실험 조건에 따라 내부 노즐과 외부 노즐을 통하여 공급하는 연료의 유량과 종류를 달리하였다. 연료로는 CP급의 에틸렌(순도 99.5%)과 프로판(순도 99.5%)을 사용하였고, 연료의 유량 제어에는 질량흐름제어장치(MFC, MKS)와 readout 장치(LOKAS, GMATE2000)를 사용하였다. Fig. 2는 실제로 사용된 버너의 노즐 부위를 보여주고 있으며 이때 화염을 안정화시키기 위하여 노즐주위로 1000cc/s의 shield 공기를 공급하였다.

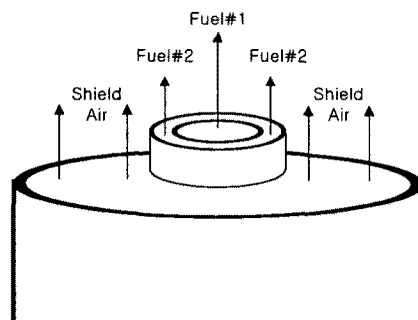


Fig. 1 Concentric fuel supply.

실험장치의 작동 및 실험 데이터의 수집은 DAQ(Data acquisition) Board와 GPIB(General Purpose Interface Bus)를 사용하는 LabVIEW 프로그램을 이용하였다. 광소멸법을 통한 매연체적분률의 측정에는 He-Ne 레이저(632.8 nm)와 Lock-in-Amplifier (Stanford Research, SR510)가 사용되었다. 동축류 화염의 위치에 따른 매연 생성 정도를 측정하는

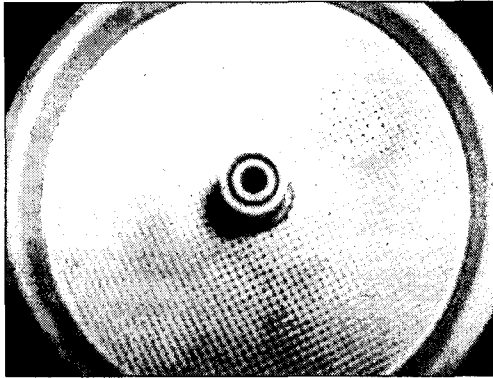


Fig. 2 Concentric co-flow nozzle.

과정에서 버너의 위치 제어를 위해 Unipolar형 Stepping motor(400 pulse/rev)가 3차원으로 방향 제어를 하는 3축 이송장치를 구동하였고, 각 축은 0.01mm의 해상도를 갖는다. 레이저의 출력 변화를 보정 하기 위하여 화염의 전, 후에서 Photo-diode를 설치하고 화염으로 향하는 레이저 빔의 세기를 측정함으로써 기준광의 변화를 고려하여 정확한 데이터 값을 얻을 수 있도록 하였다.

에틸렌에 첨가된 프로판이 매연생성을 증가시키는 원인을 알아보기 위하여 연료의 총 탄소 질량흐름률을 일정하게 유지한 상태(에틸렌 3.0 scc/s에 해당)에서 에틸렌/프로판의 혼합비율과 동심원으로 배열된 노즐의 연료 공급위치를 변경하면서 매연체적분률을 측정하였다. 실험에 사용된 연료의 유량과 공급 배열 조건은 Table 1과 같으며, 각각의 조건에 대하여 화염높이 15, 20, 25, 30, 40, 50 mm 위치에서 반경방향으로 적분된 매연체적분률을 측정하였다. 광소멸법을 이용한 매연체적분률의 측정 방법은 참고문헌⁽⁶⁾에 설명되어 있으며, 매연입자의 굴절율은 $m=1.57-0.56i$ 를 사용하였다.

Table 1 Experimental conditions.

Case	Outer nozzle (scc/s)	Inner nozzle (scc/s)
1	C ₃ H ₈ (1.0)	C ₂ H ₄ (1.5)
2	C ₂ H ₄ (1.5)	C ₃ H ₈ (1.0)
3	C ₃ H ₈ (0.30)	C ₂ H ₄ (2.55)
4	C ₂ H ₄ (2.55)	C ₃ H ₈ (0.30)
5	C ₂ H ₄ (2.55)	C ₂ H ₄ (0.45)
6	C ₂ H ₄ (2.55)+C ₃ H ₈ (0.30)	

3. 결과 및 고찰

동심원 구조의 동축류버너를 사용하여 얻어진 화염은 연료가 각각 다른 종류와 유속으로 공급되더라도 하나의 확산화염을 형성하였다. Fig. 3은 case 2의 조건에서 형성된 동축류화염을 보여주며, 순수 에틸렌화염과 비슷한 것을 알 수 있다.

Figure 4는 화염의 각각 다른 높이에서 측정된 적분된 매연체적분률의 전형적인 예로 case 2(외부 : C₂H₄ 1.5 scc/s, 내부 : C₃H₈ 1.0 scc/s) 화염의 매연입자 분포를 보여주고 있다. 이 결과로부터 본 실험에 사용된 동축류 확산화염은 30 mm 높이까지 매연의 생성이 활발하고 그 이후에는 점차로 생성이 둔화되고 매연입자의 산화가 시작되는 것을 알 수 있다. 또한 매연 생성지역인 30 mm 이하의 지역에서는 매연입자가 화염의 바깥쪽에 집중되어 있으며, 화염의 높이에 따라 화염반경이 줄어들고 매연의 분포 지역이 좁아지는 것을 알 수 있다.

Figures 5-10은 연료 종류와 질량흐름률을 변화시키면서 화염의 각각 다른 높

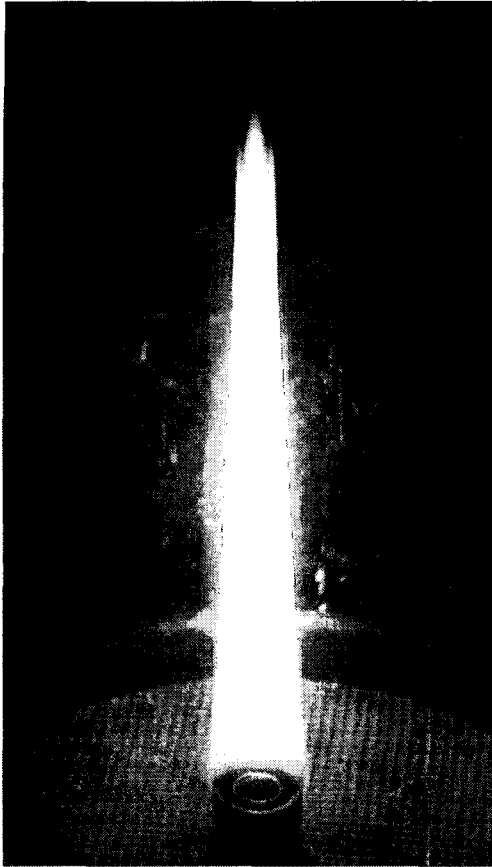


Fig. 3 Ethylene/propane flame.

이에서 측정된 매연체적분율을 보여주고 있다.

Case 1(외부 : C_3H_8 1.0 scc/s, 내부 : C_2H_4 1.5 scc/s)과 case 2(외부 : C_2H_4 1.5 scc/s, 내부 : C_3H_8 1.0 scc/s)의 경우에는 연료의 50%(탄소질량 기준)가 프로판이지만 그 매연생성 특성이 순수 에틸렌화염(case5)과 거의 동일하며, 순수 프로판 화염보다 매연생성이 크게 증가한 것을 알 수 있었다. Hwang 등⁽⁴⁾은 에틸렌과 프로판을 미리 혼합하여 공급한 실험을 수행하였으며, 그 경우에도 에틸렌에 혼합된 프로판의 synergistic 효과에 의한 매연생성의 증가를 보고한 바 있

다. 동심원 방향으로 층상으로 공급된 에틸렌/프로판 확산화염의 경우에도 synergistic 효과에 의해서 매연의 생성이 증가하는

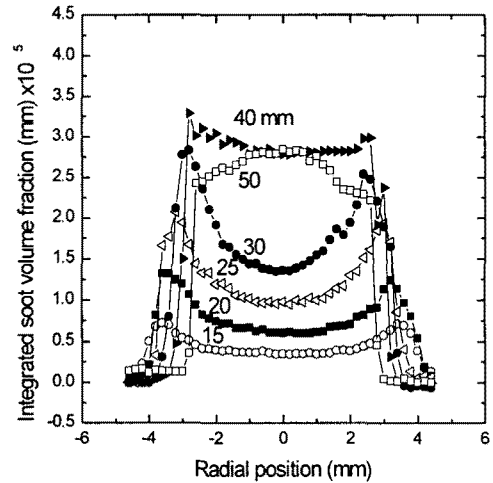


Fig. 4 Radial profiles of integrated soot volume fraction at the various heights for case 2.

것을 알 수 있다. 그러나 에틸렌/프로판의 비율과 연료 공급 방법에 따라 매연의 생성 특성의 변화가 상이하었다. 다량의 프로판(탄소질량 기준 50%)이 공급되는 경우에는 연료 공급 배열의 변화가 매연의 생성에 크게 영향을 주지는 않았지만, 에틸렌에 소량의 프로판을 혼합하는 경우에는 연료혼합 효과에 의한 매연생성의 증가와 연료 공급 배열의 변화에 따른 영향이 나타났다.

연료 공급 배열의 영향은 15 mm 높이에 가장 현저하였다. Fig. 5는 화염 높이 15 mm에서 화염의 조건에 따른 매연입자의 반경방향 분포를 보여주고 있다. 매연생성 특성은 적분된 매연체적분류의 해석과 차이가 없다고 판단되어 (현재 Abel 변환을 이용하여 공간해상도

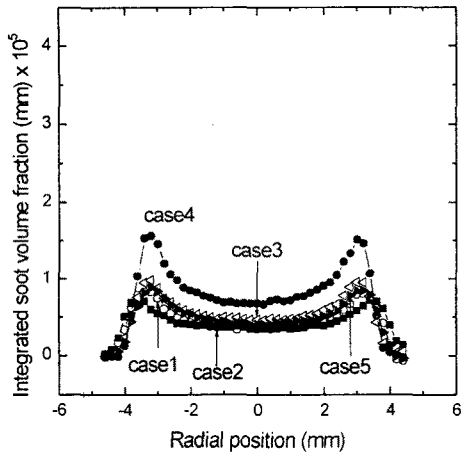


Fig. 5 Radial profiles of integrated soot volume fraction at the flame height of 15 mm.

를 갖는 매연체적분율을 분석 중) 적분된 매연체적분율을 그대로 비교하였다. 에틸렌(2.55 scc/s)에 소량의 프로판(0.3 scc/s)이 추가된 case 3 과 case 4의 경우 순수에틸렌(3.0 scc/s)을 사용한 case 5(외부 : C_2H_4 2.55 scc/s, 내부 : C_2H_4 0.45 scc/s) 보다 매연의 생성이 증가하였으며, 특히 소량의 프로판이 내부 노즐에서 공급되는 case 4(외부 : C_2H_4 2.55 scc/s, 내부 : C_3H_8 0.3 scc/s)의 경우 매연생성의 뚜렷한 증가가 관찰되었다.

Figures 5-8에서 보여주는 것과 같이, 내부노즐을 통한 소량의 프로판 공급에 따른 매연생성의 증가는 화염높이 30-40 mm까지 나타났으며, 이때 화염의 높이가 높아짐에 따라 매연의 증가폭이 줄어드는 것을 알 수 있었다.

Figure 10은 매연이 산화되는 화염 높이인 50 mm의 매연 분포와 체적분율을 보여주고 있으며, 실험된 모든 조건에서 비슷한 결과를 나타내었다. 따라서 연료가 분리되어 공급되는 경우에도 프

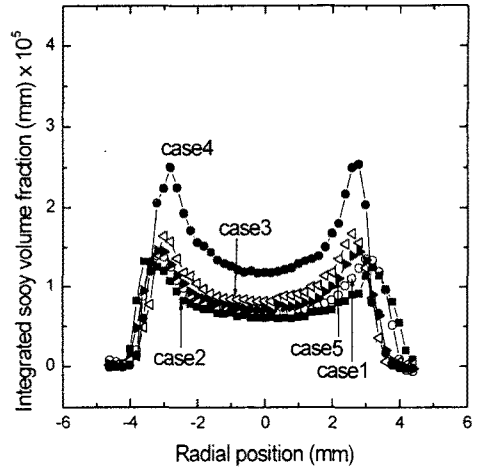


Fig. 6 Radial profiles of integrated soot volume fraction at the flame height of 20 mm.

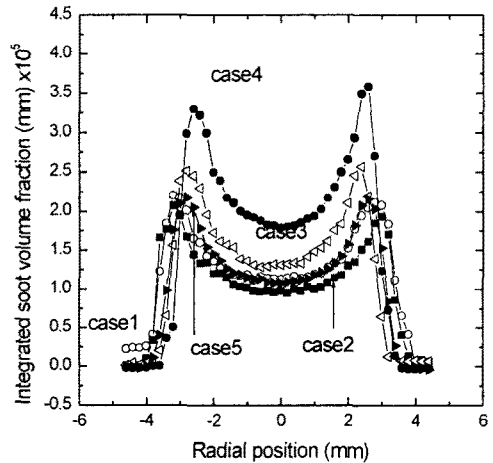


Fig. 7 Radial profiles of integrated soot volume fraction at the flame height of 25 mm.

로판 추가에 따른 synergistic 효과는 매연생성 지역에서만 크게 나타나는 것을 알 수 있었다.

내부 노즐로 에틸렌이 공급되고 소량의 프로판이 외부 노즐로 공급되는 case 3(외부 : C_3H_8 0.3 scc/s, 내부 : C_2H_4

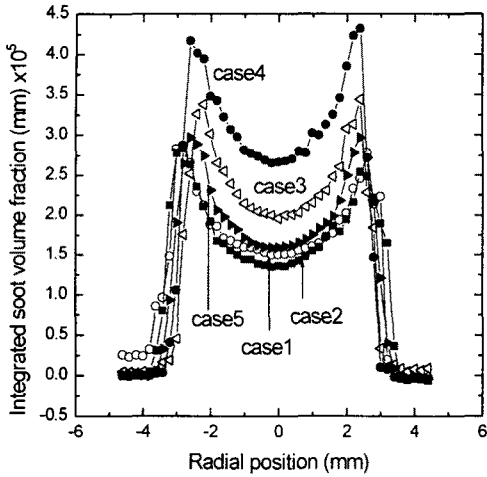


Fig. 8 Radial profiles of integrated soot volume fraction at the flame height of 30 mm.

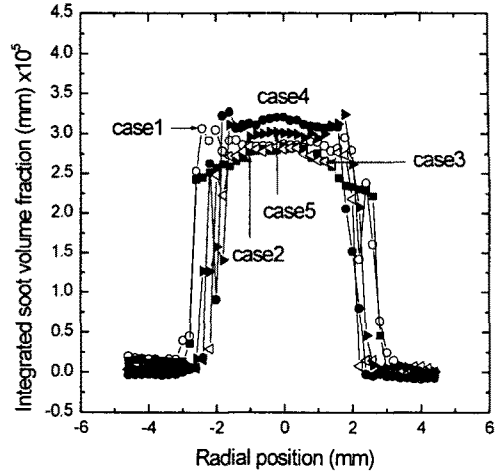


Fig. 10 Radial profiles of integrated soot volume fraction at the flame height of 50 mm.

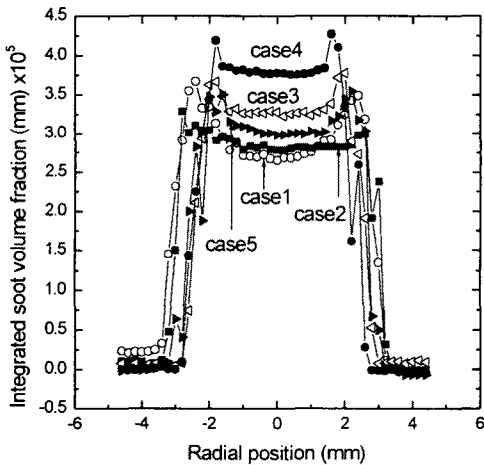


Fig. 9 Radial profiles of integrated soot volume fraction at the flame height of 40 mm.

2.55 scc/s)의 경우 화염 높이 15 mm에서는 매연생성이 순수 에틸렌화염(case 5)의 경우와 큰 차이를 보이지 않았다 (Fig. 5). 그러나 Fig. 6-8에서와 같이 화염의 높이가 증가되면서 점차로 case 3

의 경우에도 매연의 생성이 증가함이 관찰되었다. 이와 같은 연료 공급 배열의 변화에 따른 매연생성량의 차이는 다음으로 설명될 수 있다.

에틸렌에 혼합된 프로판의 매연생성 증가 효과는 프로판의 산화과정에서 생성된 다량의 PAH가 에틸렌의 산화 과정에서 생성된 중간생성물인 아세틸렌(C_2H_2)과 작용하여 매연생성의 증가를 가져올 수 있다.^(4,7) 프로판 화염이 외부에 생성되는 case 3의 경우, 프로판의 연소과정에서 생성된 PAH는 고온의 산화 조건에 노출되어 있으므로 주로 산화과정을 통하여 소멸된다고 생각된다. 이 경우에는 프로판의 연소과정에서 생성된 PAH가 화염의 매연생성에 크게 기여할 가능성이 낮게된다. 그러나 에틸렌화염이 외부에 생성되는 case 4의 경우, 프로판은 산화제와 분리된 화염 내부의 고온지역에 많이 존재하게 된다. 따라서 프로판의 산화(또는 열분해)과정에서 생성된 PAH

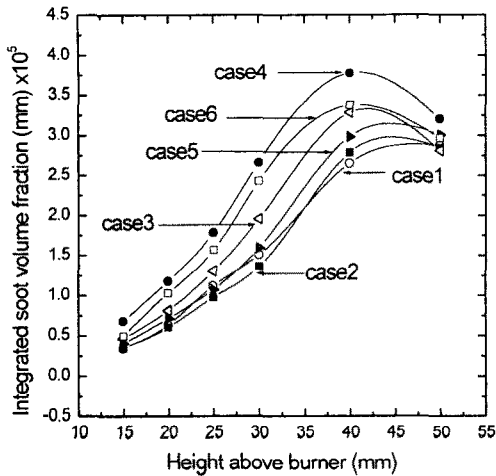


Fig. 11 Integrated soot volume fractions at the centerline.

는 고온의 화염지역으로 확산되면서 화염의 매연 생성에 기여한다고 생각된다.

Fig. 11은 화염의 중심 축을 통과하는 시각선을 따라 적분된 매연체적분률이 화염의 높이에 따라 변화하는 경향을 보여주고 있다. 에틸렌과 프로판이 미리 혼합되어 공급된 경우인 case 6(C_2H_4 2.55 scc/s + C_3H_8 0.3 scc/s)와 소량의 프로판이 외부 노즐에서 공급되는 case 3 및 내부 노즐에서 공급되는 case 4를 비교하면, case 6의 매연생성량이 case 3 보다 많지만 case 4 보다 적다는 것을 알 수 있다. 매연입자는 고온 화염 면의 내부에 위치하는 연료 과농 지역에서 생성되며, 특히 PAH는 매연생성 초기단계에서 중요한 역할을 한다고 알려져 있다. 따라서 프로판이 외부 노즐로 공급되는 경우보다 내부 노즐로 공급되는 경우 더 많은 PAH의 생성과 이에 따른 에틸렌/프로판 화염의 매연생성 증가가 나타난다고 생각된다.

4. 결론

동심원 동축류버너를 이용하여 에틸렌과 프로판의 공급 배열을 변경하며 확산 화염의 매연체적분율을 측정하였다.

외부노즐로 프로판이 공급되는 화염은 프로판과 에틸렌이 균일하게 혼합되어 공급되는 화염보다 매연생성량이 증가하였다. 반면에 에틸렌이 외부노즐로 공급되는 화염은 균일하게 혼합된 화염보다 매연생성량이 감소하였다. 이는 외부노즐로 프로판이 공급되는 경우 프로판의 연소과정에서 생성된 PAH는 주로 산화 과정을 거치는 반면, 프로판이 내부노즐로 공급되는 경우에는 PAH가 산화되지 않고 매연생성과정에 참여하기 때문이라고 생각된다.

실험 결과로부터 프로판과 에틸렌이 함께 공급되는 확산화염의 매연생성 특성은 연료의 혼합비율 뿐만 아니라 연료의 혼합 방법에 의해서도 영향을 받는 것을 알 수 있었다.

참고문헌

- (1) Frenklach, M. and Wang, H., in *Soot Formation in Combustion* (H. Bockhorn Ed.), Springer-Verlag, Berlin, 165-192, 1994.
- (2) Stein, S. E., Walker J. A., Survan M. M. and Fahr, A., 23rd *Symp. Int. Combust.*, The Combustion Institute, Pittsburgh, 85, 1990.
- (3) Boehm, H., Boenig, M. and Feldermann, C., in *Soot Formation in Combustion*, (H. Bockhorn Ed.),

Springer-Verlag, Berlin, 145-164,
1994.

- (4) Hwang, J. Y., Lee, W., Kang, H.
G. and Chung, S. H., *Combust. and
Flame*, 114, 370-380, 1998.
- (5) 김성기, 단국대학교 석사학위 논문,
1997.
- (6) 이원남, 대한기계학회논문집 B, 10,
1445-1453, 1998.
- (7) Hwang, J. Y., Chung, S. H. and
Lee, W., *27th Symp. Int. Combust.*,
The Combustion Institute,
Pittsburgh, 1531-1538, 1998.