

이중동축류 화염을 이용한 혼합연료의 매연생성 특성에 관한 연구

이원남* · 남연우**

Soot Formation Characteristics of Concentric Diffusion Flames with Mixture Fuels

Wonnam Lee, Yeon Woo Nam

ABSTRACT

The synergistic effect of ethylene/propane and ethylene/methane mixtures on soot formation is studied experimentally with a concentric co-flow burner. The integrated soot volume fractions, laser light scattering signal and PAH concentrations are measured for different fuel supply configurations. The synergistic effect in ethylene/propane diffusion flames is found to be affected not only by the composition of mixture but also by the way of mixing. Comparing to the homogeneously mixed ethylene/propane case, the increase of soot formation is observed when propane is supplied through the inner nozzle, while the decrease is observed when propane is supplied through the outer nozzle. However, the measured PAH concentration distributions are inconsistent with the current view of the synergistic effect of ethylene/propane mixture on soot formation. Virtually no synergistic effect is observed in ethylene-methane flames regardless of the fuel supply configuration, which suggests the important role of C_3 species produced during the propane pyrolysis process for the synergistic effect.

Key Words : Soot, PAH, Synergistic effect, Diffusion flame.

1. 서론

매연입자 생성메커니즘의 이해는 연소와 관련된 다양한 분야에서 요구되고 있다. 특히 확산 연소가 사용되는 연소기에서 배출되는 대기 오염물질의 저감과 연소실 내의 복사열전달 특성 변화 등은 매연생성 특성에 직접적인 영향을 크게 받게 된다. 이에 따라 많은 연구가 수행되어¹⁻³⁾ 매연생성 메커니즘에 대한 이해가 이루어지고 있으나 아직도 매연생성 메커니즘에 대한 이해가 매연생성 과정을 예측하는 데는 충분하지 못한 실정이다.

Hwang et al.⁴⁾, 강희곤⁵⁾ 등은 에틸렌/프로

판 혼합연료의 조성비 변화에 따라 순수 에틸렌 또는 프로판 화염에서 보다 매연이 증가하는 매연 상승효과가 있음을 발표하였다. 그 후 매연생성 초기 단계에 프로파길(C_3H_3) 또는 알렌(C_3H_4)과 같은 C_3 화학종의 재결합 반응이 기여할 수 있다는 연구가 많은 연구자들에 의해 실험적 검증되고 있으며, 이를 바탕으로 매연생성 초기 단계의 반응 메커니즘에 대한 이론적 연구와 모델링이 수행되고 있다. 최근에는 에틸렌/프로판 및 에틸렌/n-부탄 혼합연료를 이용한 실험에서 synergistic 효과가 유사하게 나타나는 것이 관찰되었으며,⁶⁾ 이는 매연생성 초기 단계에서의 C_3 화학종이 포함되는 반응 메커니즘이 매우 중요한 역할을 할 수 있다는 것을 의미한다. 그러나 이와 같은 C_3 화학종이 포함되는 반응 경로에 대한 실험적 자료가 아직 충분하지 못한 실정이므로 본 연구에서는 에틸렌/프로판 및 에틸렌/매탄 혼합 연료

* 단국대학교 기계공학과

† 연락처자, E-mail : wlee@dku.edu

** 단국대학교 대학원 기계공학과

에 대하여 매연생성 상승효과의 반응 메커니즘을 이해하기 위한 실험을 수행하였으며, 연료의 혼합과 공급 방법의 변화에 따른 이중동축류 버너에서 형성된 화염의 매연과 PAH 농도 변화를 알아보았다.

2. 실험장치 및 방법

실험에 사용된 이중동축류 버너는 내경이 8.0 mm인 외부 노즐과 내경이 4.0 mm인 내부 노즐로 구성되어 있으며, 특히 두 노즐의 중심을 정확하게 일치시키기 위하여 내부 노즐의 위치를 미세하게 조정할 수 있도록 제작하였다. 연료는 CP급의 에틸렌(순도 99.5%), 프로판(순도 99.5%) 및 메탄(순도 99.9%)을 사용하였으며 질량흐름제어장치(MFC, MKS)와 readout 장치(LOKAS, GMATE2000)를 사용하여 유량을 조절하였다. 화염의 안정을 위하여 아크릴과 스크린으로 제작된 shield 속에 버너를 장착하였으며 노즐주위로 1000 scc/s의 shield 공기를 공급하였다.

아르곤 레이저(Spectra-Physics Stabilite 2017-05)의 514.5nm 파장(출력 1.0 W)을 사용하여 광소멸 및 광산란 측정을 수행하고 적분된 매연체적분율과 반경 방향의 매연 분포를 측정하였다. 또한 PAH의 분포는 488.0 nm 파장(출력 1.0 W)의 레이저광을 조사하고 514.5 nm에서 발생하는 신호를 PMT 모듈(Hamamatsu H7712-02)과 두 개의 514.5 nm ± 1.0 nm(FWHM) narrow-band-pass filter를 사용하여 측정하였다. Fig. 1과 Fig. 2는 실험 장치의 구성도를 보여주고 있다.

에틸렌/프로판 및 에틸렌/메탄 혼합연료의 실험은 연료의 총 탄소 질량흐름율을 (에틸렌 3.0 scc/s에 상당하도록) 일정하게 유지하면서 에틸렌/프로판 또는 에틸렌/메탄의 혼합비율을 변경하여 매연체적분율과 PAH 신호를 측정하였다. 특히 동일한 혼합조건에서 프로판 또는 메탄이 내부 노즐로 공급되는 경우와 외부 노즐로 공급되는 경우를 비교하여 실험하였다. 에틸렌/프로판의 경우 내경 8.0 mm의 단일 노즐로 혼합된 연료가 공급되는 조건에서도 실험을 수행하였으며, 실험조건은 Table 1에 나타내었다.

Figure 3은 이중동축류 버너에서 내부노즐로 프로판이 외부노즐로 에틸렌이 공급되는 확산 화염을 보여주고 있으며 화염의 외형적인 구

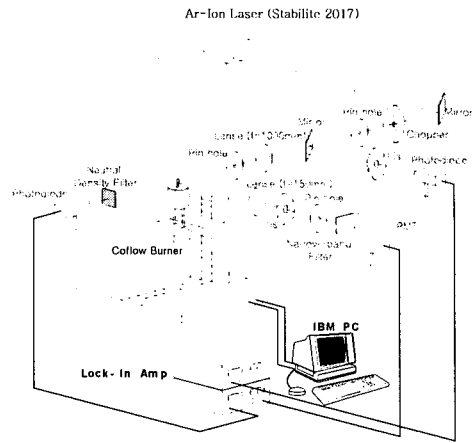


Fig. 1 Experimental set-up



Fig. 2 Light scattering/extinction measurement.

Table 1 Experimental conditions.

	Inner nozzle (scc/s)	Outer nozzle (scc/s)
1	C ₂ H ₄	C ₃ H ₈
2	C ₃ H ₈	C ₂ H ₄
3	C ₂ H ₄ +C ₃ H ₈	
4	C ₂ H ₄	CH ₄
5	CH ₄	C ₂ H ₄

조는 단일노즐을 사용하는 에틸렌 확산화염과 같았다. 특히 텅 팁의 형성이 내칭적으로 형성되어 내부와 외부 노즐의 중심이 잘 일치하는 것을 알 수 있다.



Fig. 3 Ethylene/propane flame.

3. 결과 및 고찰

Figure 4는 에틸렌/프로판 혼합연료를 (1) 프로판을 내부 노즐로 공급, (2) 단일노즐을 사용, (3) 프로판을 외부 노즐로 공급하는 조건에서 혼합연료 중 프로판 분율의 변화에 따른 적분된 매연체적분율의 최대값을 비교하고 있다. 프로판이 내부노즐로 공급되는 경우 프로판 혼합분율 $X_{C_3H_8}=0.1$ 에서 매연의 최대값이 관찰되었으나 단일노즐과 프로판이 외부노즐로 공급되는 경우에는 각각 프로판 $X_{C_3H_8}=0.15$ 와 0.3 에서 매연이 가장 많이 발생하였다. 또한 측정된 매연의 양은 프로판이 내부노즐로 공급되는 경우가 가장 많았으며 프로판이 외부노즐로 공급되는 경우가 가장 적었다. 이와 같은 차이를 이해하기 위하여 Table 2의 조건을 설정하여 화염높이 15 mm와 30 mm에서 매연입자와 PAH 분포를 측정하였다.

Figure 5는 프로판 혼합분율이 $X_{C_3H_8}=0.1$ 인 경우인 $C_2H_4(2.7)+C_3H_8(0.2)$ 혼합연료 화염의 높이에 따라 적분된 매연체적분율의 변화를 보여주고 있다. 이 그림에서는 순수 에틸렌 ($X_{C_3H_8}=1$)과 순수 프로판 확산화염 ($X_{C_3H_8}=0$) 측정결과도 함께 보여주고 있다. 프로판이 내부노즐로 공급되는 case 4의 경우 프로판이 외부노즐로 공급된 case 2보다 매연이 빨리 생성되고 더 많이 생성되는 것을 알 수 있다.

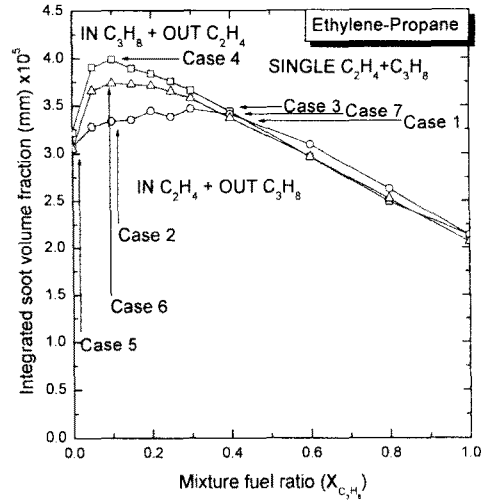


Fig. 4 Maximum integrated soot volume fractions in ethylene/propane flames.

Table 2 Selected experimental conditions for laser light scattering and PAH measurements

Case	Inner nozzle (scc/s)	Outer nozzle (scc/s)
1	C ₂ H ₄ (1.8)	C ₃ H ₈ (0.8)
2	C ₂ H ₄ (2.7)	C ₃ H ₈ (0.2)
3	C ₃ H ₈ (0.8)	C ₂ H ₄ (1.8)
4	C ₃ H ₈ (0.2)	C ₂ H ₄ (2.7)
5	C ₂ H ₄ (3.0)	
6	C ₂ H ₄ (2.7)+C ₃ H ₈ (0.2)	
7	C ₂ H ₄ (1.8)+C ₃ H ₈ (0.8)	
8	C ₃ H ₈ (2.0)	

동일한 조건의 화염 높이 15 mm에서 측정된 PAH 분포를 Fig. 6에 나타내었다. 측정된 매연의 결과와는 달리 $X_{C_3H_8} = 0.1$ 실험 조건 중에서 매연이 가장 많이 발생한 case 4의 경우 매연 발생이 가장 적은 case 2보다도 PAH가 작게 나타났다. 그러나 매연 발생이 case 2보다 많고 case 4보다 적은 case 6(혼합연료가 단일 노즐로 공급)의 조건에서 PAH의 농도가 가장 높게 나타났다. 이와 같은 본 실험에서의 결과는 매연의 생성과 PAH 농도 사이에 일관성이 없다는 것을 보여준다. 따라서 연료의 혼합에 따른 매연생성의 synergistic 효과가 단순히 PAH의 증가로만 설명되지 않을 수 있다는 가능성을 제시하고 있다.

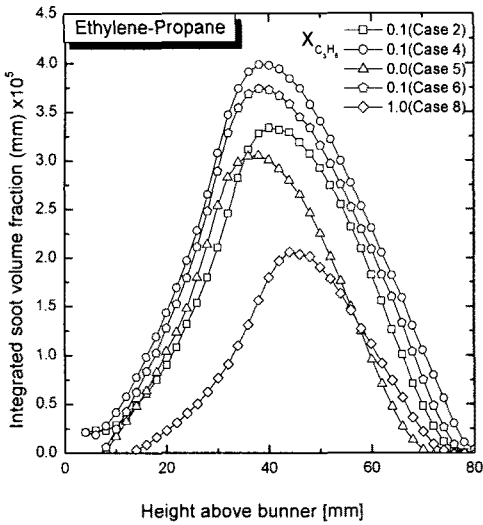


Fig. 5 Integrated soot volume fractions for $X_{C_3H_8} = 0.1$.

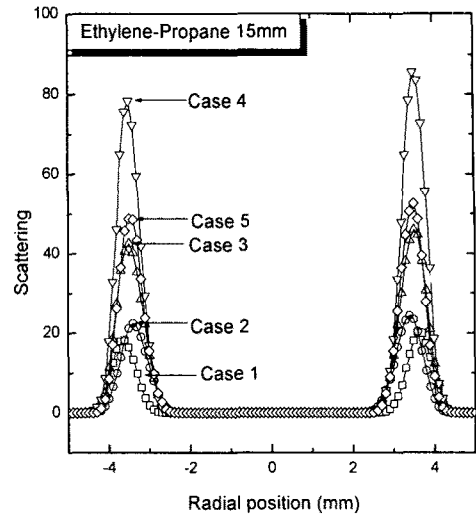


Fig. 7 Light scattering distribution measured at 15 mm above the nozzle

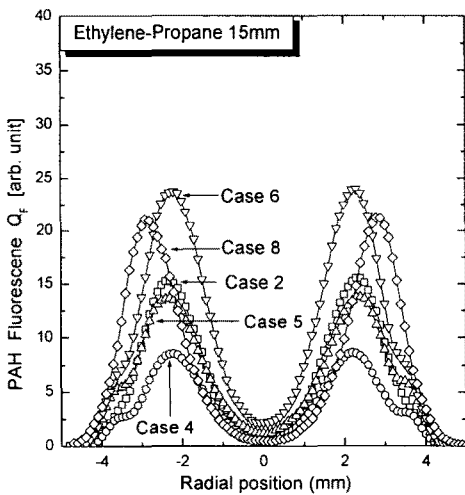


Fig. 6 Radial distribution of PAH for $X_{C_3H_8} = 0.1$.

Figure 7은 같은 높이에서 측정된 매연의 분포를 나타내는 광산란 신호를 보여주고 있다. Fig. 6의 PAH 결과와 비교하여 case 4의 경우 이미 매연이 많이 생성되어 PAH 농도가 크게 감소할 수 있는 가능성도 배제할 수 없다. 그러나 매연이 더 많이 생성된 case 5와 case 6(Fig5의 15mm 위치)의 경우 case 2보다 PAH 농도가 같거나 더 높게 나타났다. 그러므로 이 결과 또한 본 연구에서의 실험 조건에서는 매연과 PAH의 직접적인 상관관계가 크지 않을 수 있음을 나타낸다.

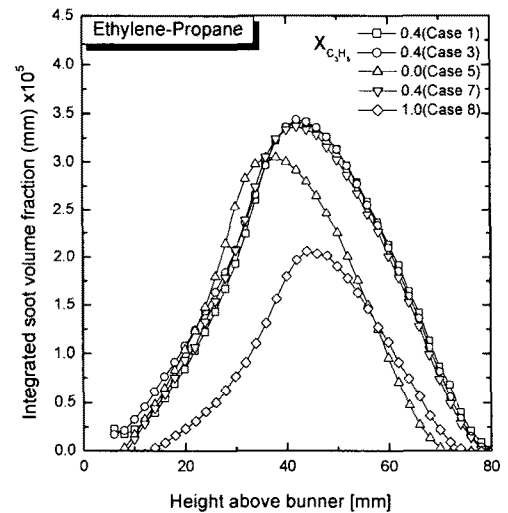


Fig. 8 Integrated soot volume fractions for $X_{C_3H_8} = 0.3$.

Figure 8은 적분된 매연체적분율이 비교적 동일한 $X_{C_3H_8} = 0.3$ 조건에서 연료의 공급 위치의 변경에 따른 매연생성 특성을 측정한 결과를 보여주고 있으며, 매연생성특성이 case 1, 3, 7 모두 유사한 것을 알 수 있다. 그러나 Fig. 9에서와 나타난 것과 같이 동일한 조건의 화염 높이 15 mm에서는 매연생성 특성이 동일하지만 PAH 농도는 크게 차이 나는 것을 알 수 있다. 이 또한 PAH 농도 분포와 매연생성의 관련성에 대한 충분한 이해가 필요하다는 것을 보여주고 있다.

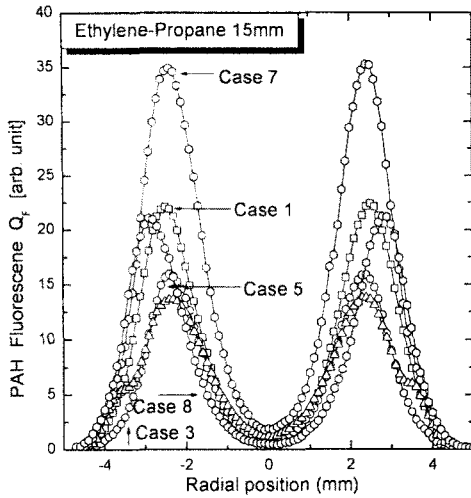


Fig. 9 Radial distribution of PAH for $X_{C_3H_8} = 0.3$.

Fig. 10과 Fig. 11는 화염 높이 30 mm에서 동일한 연료 혼합조건 ($X_{C_3H_8}=0.3$ 및 $X_{CH_4}=0.1$)인 case 1과 case 3(또는 case 2와 case 4)의 광산란 신호와 PAH 농도 분포를 비교하고 있다. 이때 PAH 신호중 매연이 존재하는 지역인 반경 3 mm 위치에서의 신호는 이 지역에 존재하는 매연입자에 의한 2차 산란에 따른 형광신호로 PAH 농도 분포와 관련이 없다고 판단하였다.

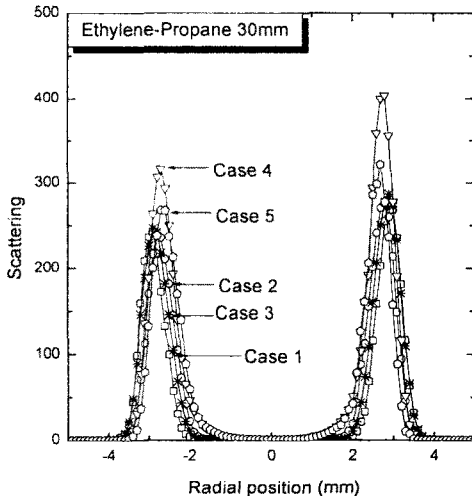


Fig. 10 Light scattering distribution measured at 30 mm above the nozzle

이 경우에도 매연의 산란 신호와 PAH 농도 분포의 상관관계가 크지 않은 것으로 나타났다. 따라서 혼합연료의 synergistic 효과는 PAH만으로 이해하기 어려우며 추가적인 실험이 필요함을 알 수 있었으며, 현재 매연입자의 평균직경과 수밀도의 변화에 대한 연구가 진행되고 있다.

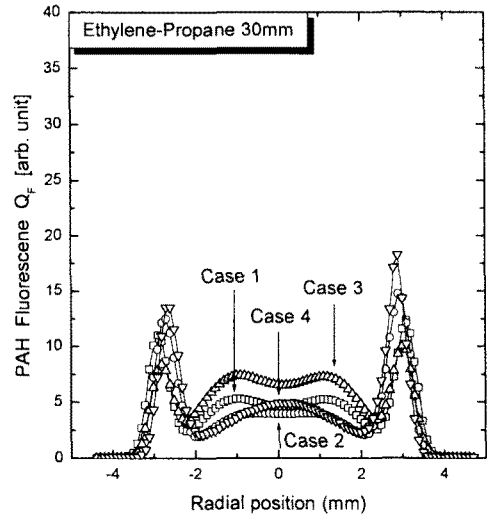


Fig. 11 Radial distribution of PAH at $X_{C_3H_8} = 0.3$.

Figure 12는 에틸렌/메탄 혼합연료의 메탄 분율 X_{CH_4} 의 변화에 따른 적분된 매연체적 분율의 변화를 나타내고 있다. 메탄분율 X_{CH_4} 가 0.4 이하인 지역에서는 메탄이 내부노즐로 공급되는 경우 매연이 약간 증가하고 메탄분율이 0.4 이상인 지역에서는 메탄이 외부노즐로 공급되는 경우 매연이 약간 증가하는 것으로 나타났다. 그러나 그 변화량이 synergistic 효과에 따른 것이라고 하기에는 너무 적었다. 또한 순수 에틸렌이 모두 내부노즐로 공급되는 경우에도 외부노즐로 공급된 경우보다 매연의 생성이 약간 증가하였다. 따라서 내부노즐로 공급되는 연료유속이 외부노즐로 공급되는 연료유속보다 작은 경우에 매연의 발생이 약간 증가하며, 이는 유동장 변화의 결과에 기인한다고 생각된다. 이와 같은 관찰을 확인하기 위하여 이중동축류 버너를 사용하여 순수 에틸렌화염의 매연생성 특성을 측정하였으며 그 결과를 Fig. 13에서 보여주고 있다. 이때 내부와 외부노즐을 통한 에틸렌의 유량(총 3.0

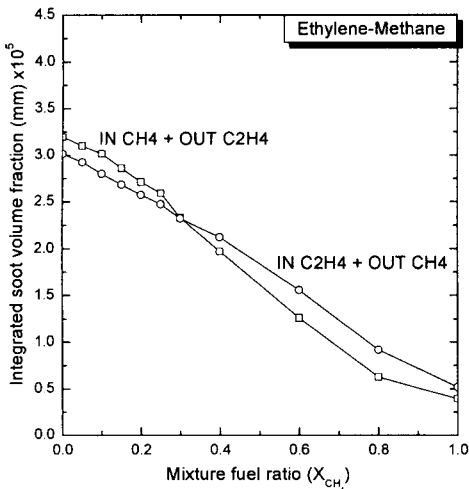


Fig. 12 Maximum integrated soot volume fractions ethylene/methane diffusion flames.

scc/s)은 (1) 에틸렌/프로판 혼합 case 2(in 2.55 out 0.45) 및 case 4(in 0.45 out 2.55)와 유사한 조건, (2) 내부와 외부의 유속이 동일한 조건(in 1.21 out 1.79) 및 (3) 단일노즐을 사용한 조건에서 실험하였다. 유동장의 변화에 따른 매연생성변화는 매우 적었으며 따라서 에틸렌/프로판 혼합연료에서 연료공급 위치의 변화에 따른 매연생성특성의 변화는 대부분 synergistic 효과와 관련되는 것임을 알 수 있었다.

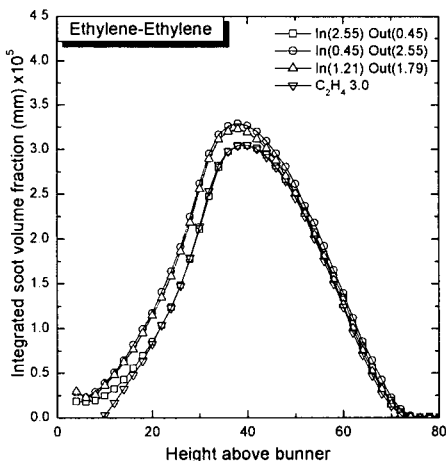


Fig. 13 Integrated soot volume fractions in ethylene/ethylene flames.

4. 요약

이중동축류 버너를 사용하여 에틸렌/프로판 및 에틸렌/메탄 혼합 연료의 매연생성 상승효과와 관련된 매연생성 메커니즘을 이해하기 위한 실험을 수행하였다. 매연체적분율, 광산란 신호 및 PAH 형광신호를 측정할 결과 다음을 알 수 있었다.

에틸렌/프로판 혼합연료에서 연료공급 위치의 변화에 따른 매연생성특성의 변화는 대부분 synergistic 효과와 관련되는 것임을 알 수 있었다. 그러나 에틸렌/메탄 혼합연료의 경우 연료공급의 위치변화가 매연생성에 크게 영향을 주지 않았다.

PAH 분포는 synergistic 효과에 의한 매연생성 특성의 변화와 일관성이 없는 것이 관찰되었다. 따라서 synergistic 효과에 대한 PAH의 역할에 대한 이해가 필요함을 알 수 있었다.

참고문헌

- (1) H. Richter and J. B. Howard, "Formation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Their Growth to Soot: A Review of Chemical Reaction Pathways," *Progress in Energy and Combustion Science*, 26, 4-6, 565-608, 2000
- (2) H. Bockhorn (Ed.), *Soot Formation in Combustion*, Springer-Verlag, Berlin, 1994.
- (3) R. J. Santoro, "Soot Formation: A View of Our Current Understanding," 1998 ESSCI meeting, 1998
- (4) J. Y. Hwang, W. Lee, H. G. Kang, and S. H. Chung, "Synergistic Effect of Ethylene-Propane Mixture on Soot Formation in Laminar Diffusion flames," *Combust. and Flame*, 114, 370-380, 1998.
- (5) 강희곤, "충류 확산화염의 매연 생성에 관한 실험적 연구: 연료/공기, 연료 혼합 및 압력의 영향," 단국대학교 석사학위 논문, 1997.
- (6) W. Lee, Y. T. Han and K. H. Lee, "Synergistic Effect on Soot Formation in Ethylene-Alkanes Mixture Flames, WIP poster, 29th Symp. Int. Combust., 2002.