

이중동축류 확산화염에서의 매연 및 PAH 생성 특성

이 원 남^{*1)} · 남 연 우²⁾

단국대학교 기계공학과^{*1)} · 단국대학교 대학원²⁾

Soot and PAH Formation Characteristic of Concentric Co-Flow Diffusion Flames

Wonnam Lee^{*1)} · Youn Woo Nam²⁾

¹⁾Department of Mechanical Engineering, Dankook University, Seoul 140-714, Korea

²⁾Graduate School, Dankook University, Seoul 140-714, Korea

(Received 8 December 2004 / Accepted 31 December 2004)

Abstract : The synergistic effect of ethylene/propane mixture on soot formation is studied experimentally using a concentric co-flow diffusion burner, which provides the stratified fuel mixture. The soot volume fraction, soot particle diameter, number density and PAH concentrations are measured with various fuel supply configurations and compared to the homogeneously mixed case. When propane is supplied through the inner nozzle, an increase of soot formation is observed. However, when propane is supplied through the outer nozzle, a decrease is observed. The reaction path of PAH's formed from the pyrolysis process of propane is likely to be responsible to the observed differences. When propane is supplied through the outer nozzle, PAH's are formed in the relatively near oxidation region and exposed to the oxidization environment; on the other hand, when propane is supplied through the inner nozzle, PAH's are not likely to be oxidized and thus get involved in soot formation process. The synergistic effect in ethylene/propane diffusion flames is found to be affected not only by the composition of the mixture but also by the way of mixing.

Key words : Diffusion flame(확산화염), Soot(매연), PAH(다중고리 방향족 탄화수소), Synergistic effect(상승효과), Stratified fuel mixture(성층화 혼합 연료)

Nomenclature

f_v : soot volume fraction
 X_B : fuel B ratio in fuel mixture
 Q_{vv} : scattering cross section
 D_{pq} : mean diameter(pq^{th} moment)
 N : number density
scc/s : standard cubic centimeter per second

1. 서론

디젤엔진에서 배출되는 입자상 오염물질의 대부분은 매연으로 이루어져 있다. 따라서 디젤엔진에서 배출되는 매연을 줄이기 위한 많은 연구개발이 이루어지고 있다. 특히 연소특성을 개선하여 매연의 생성과 배출을 억제하는 기술은 비교적 간단하게 실용 엔진에 적용할 수 있고 또한 추가적인 비용을 최소화 할 수 있어 이에 대한 연구가 계속되고 있다. 최근에는 디젤엔진에서 주 연료 이외에 부가적으로 부탄,¹⁾ 알코올^{2,4)} 등을 보조 분사를 하거나 미

^{*}To whom correspondence should be addressed.
wlee@dku.edu

리 연료와 혼합 공급하여 연소 특성을 개선하려는 연구도 활발하게 수행되고 있다.

디젤엔진은 기본적으로 확산화염을 이용하고 있다. 따라서 디젤엔진에서 생성되는 매연을 저감하기 위해서는 확산화염의 매연생성 특성에 대한 충분한 이해가 필요하다. 확산화염을 이용한 매연생성특성에 관한 연구는 지난 수십 년 동안 수행되어 왔다. 그 결과 매연생성 메커니즘에 대한 많은 이해가 이루어지고 있다.^{5,6)} 최근에는 연료의 혼합에 따라 매연생성 상승효과(synergistic effect)가 발생할 수 있다고 알려졌으며, 이와 같은 혼합연료의 매연생성 상승효과는 매연생성 단계에서의 C₂, C₃ 메커니즘의 역할에 따른 것으로 설명되고 있다.^{7,8)} 그러나 연료 혼합에 따른 매연 상승효과의 구체적인 메커니즘은 아직 충분히 이해되지 않고 있다.

디젤엔진에 사용되는 연료는 다양한 탄화수소 성분의 혼합물로 이루어져 있다. 특히 dual 연료를 사용하는 경우에는 혼합연료의 매연생성 특성에 대한 이해가 중요하게 된다. 따라서 본 연구에서는 확산화염에서 나타나는 연료혼합에 따른 매연생성 특성을 이해하기 위한 실험을 수행하였다. 이중동축류 버너를 사용하여 에틸렌/프로판 혼합연료의 혼합방법에 따른 매연생성특성의 변화와 C₃ 메커니즘의 역할을 알아보았다.

2. 실험 장치 및 방법

에틸렌과 프로판 연료의 혼합과 혼합된 연료의 성층화를 위하여 Photo.1과 같은 이중동축류 버너(concentric co-flow burner)를 사용하였다. 이중동축류 버너는 내경이 8.0 mm 인 외부 노즐과 외경과 내경이 각각 6.35 mm와 4.0 mm 인 내부 노즐로 구성되어 있으며, 두 노즐의 중심을 정확하게 일치시키기 위하여 내부 노즐의 위치를 미세하게 조정할 수 있도록 제작하였다. 화염의 안정을 위하여 직경 2.5 mm의 유리구슬, 황동 스크린 및 세라믹 허니콤을 통과한 차단(shield) 공기를 노즐주위에 1000 scc/s (standard cubic centimeter per second)로 공급하였으며 이는 초기 유속 0.20 m/s에 해당한다. 모든 유량은 질량흐름제어장치(MKS, Brooks Instrument)와 readout 장치(LOKAS, GMATE2000)로 조절하였다.

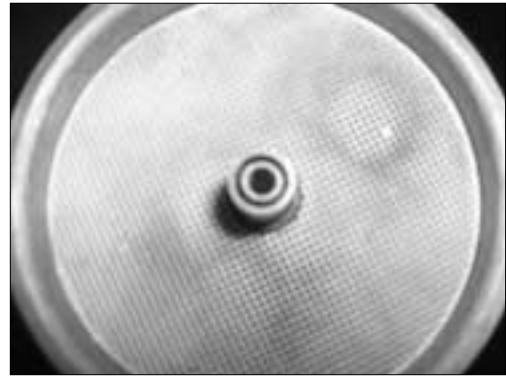


Photo. 1 Concentric co-flow nozzle

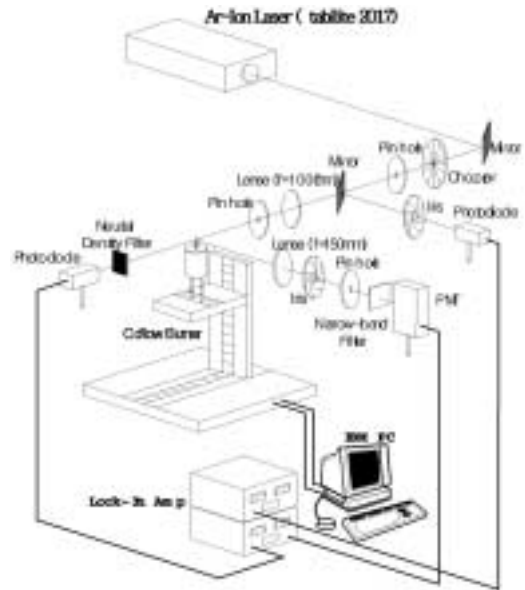


Fig. 1 Experimental set-up

Fig. 1은 실험장치의 구성도를 보여주고 있다. Ar-ion 레이저(Spectra-Physics ; Stabilite 2017-05)의 514.5 nm 파장(출력 1.0 W)을 사용하고 보편적으로 사용되는 광소멸(extinction)법 및 광산란(scattering)법^{9,10)}을 이용하여 매연체적분율(soot volume fraction, f_v), 매연입자직경(soot diameter, D_{30}) 및 수밀도(soot number density, N)를 구하였다. 신호 측정에는 광다이오드(Hamamatsu ; S1337-1010BQ), PMT 모듈(Hamamatsu; H-7112-02) 및 lock-in 앰프(SRS; SR830)가 사용되었다. 레이저광의 흡수(laser beam

attenuation)와 산란 신호의 흡수(signal trapping)를 보정하여 비교적 정확한 광산란 신호를 얻을 수 있었다. 본 연구에서는 에틸렌의 Rayleigh 산란 신호를 이용한 보정을 통하여 매연입자의 광산란 단면적 Q_{vs} 를 구하였으며, 이를 통하여 매연 입자의 평균 입경과 수밀도를 계산하였다.

광대역 LIF 신호를 이용한 PAH 측정을 위한 장치 구성은 기본적으로 광산란법에 사용된 것과 동일하다. 상대적인 PAH 농도 분포는 488.0 nm(출력 1.0 W)의 레이저광을 조사하고 514.5 nm에서 발생하는 신호를 PMT 모듈(Hamamatsu H7712-02)과 중심파장이 514.5 nm \pm 1.0 nm(FWHM)인 두 개의 협대역 통과(narrow-band-pass) 필터를 사용하여 측정하였다. Labview(NI)로 작성된 전용 프로그램과 GPIB 및 DAQ 장치를 이용하여 버너의 위치를 제어하고 모든 측정을 수행하였다.

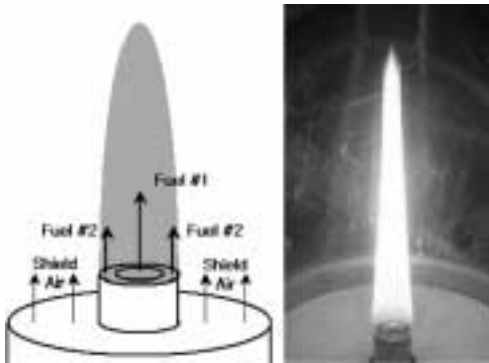


Fig. 2 Concentric co-flow flame

모든 실험은 에틸렌 3.0 scc/s에 상응하도록 연료의 총 탄소 질량흐름율을 일정하게 유지하면서 에틸렌/프로판 혼합비율을 변경하며 수행되었다. 특히 동일한 혼합조건에서, 프로판이 내부 노즐 에틸렌이 외부 노즐로 공급되는 경우와 프로판이 외부 노즐 에틸렌이 내부 노즐로 공급되는 경우를 비교하여 연료의 혼합 방법 및 혼합 정도에 따른 변화를 알아보았다. 또한 얻어진 측정값들의 비교 기준을 얻기 위하여 혼합된 연료가 내경 8.0 mm 인 단일 노즐로 공급되는 조건에서도 실험을 수행하였다. 연료는 CP급의 에틸렌(순도 99.5%)과 프로판(순도 99.5%)을 사용하였다. Fig. 2는 이중동축류 버너에

서 내부노즐로 프로판이 외부노즐로 에틸렌이 공급되는 확산화염을 보여주고 있다. 링 팁의 형성이 대칭적으로 형성되어 내부와 외부 노즐의 중심이 잘 일치하는 것을 알 수 있다. 모든 화염의 외형적인 구조는 단일노즐 에틸렌 확산화염과 동일하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 3은 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. 이때 혼합연료의 혼합비를 나타내기 위하여 프로판 혼합분율 $X_{C_3H_8}$ 를 공급되는 전체 연료 중 프로판의 몰분율로 정의하였다. 프로판이 내부노즐로 공급되는 경우 $X_{C_3H_8} = 0.1$ 에서 매연이 가장 많이 생성되었으나 단일노즐과 프로판이 외부노즐로 공급되는 경우에는 각각 $X_{C_3H_8} = 0.15$ 와 0.3에서 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 1의 조건을 설정하여 화염높이 15, 25, 35 mm에서 매연입자, 매연 입경과 수밀도를, 15 mm 높이에서 PAH를 측정하였다.

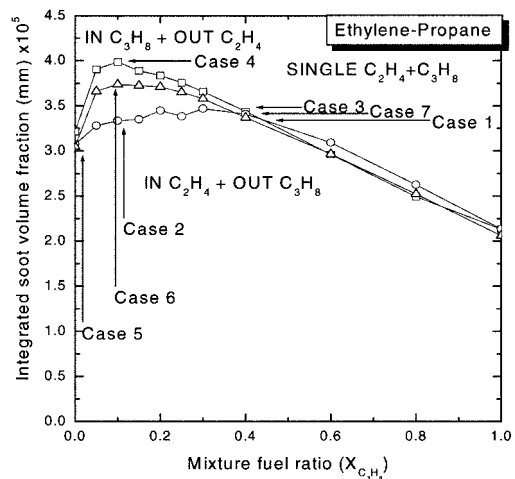


Fig. 3 Maximum integrated soot volume fractions in ethylene/propane flames

Table 1 Experimental conditions

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)	

Fig. 4는 프로판 분율이 $X_{C_3H_8} = 0.1$ (C₂H₄(2.7) + C₃H₈(0.2))인 조건에서 화염높이에 따라 변화하는 시각선(line-of-sight)으로 측정된 적분된 매연체적분율을 보여주고 있다. Fig. 4에는 에틸렌/프로판 혼합연료의 매연상승효과를 나타내기 위하여 순수한 에틸렌($X_{C_3H_8} = 0$, case 5)과 순수한 프로판 확산화염($X_{C_3H_8} = 1$, case 8)의 측정 결과도 함께 포함시켰다. 연료가 혼합되면 생성되는 매연이 증가하고 특히 프로판이 내부노즐로 공급되는 case 4의 경우 프로판이 외부노즐로 공급된 case 2보다 매연의 생성이 빠르고 더 많이 생성되는 것을 알 수 있다.

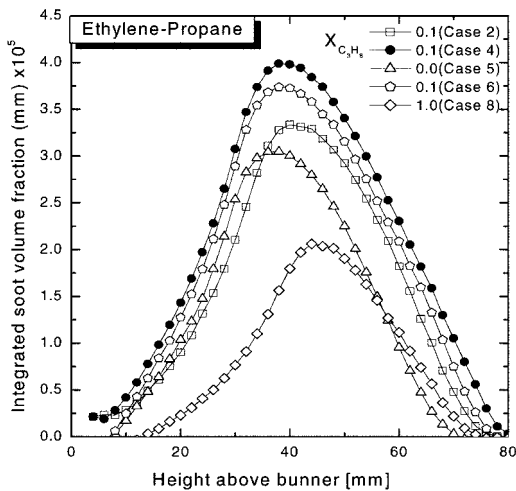


Fig. 4 Integrated soot volume fractions of ethylene/ propane mixture flames (cases 2, 4, 5, 6 and 8)

Fig. 5는 적분된 매연체적분율의 최댓값이 비교적 동일하게 관찰된 $X_{C_3H_8} = 0.4$ 조건에서 연료의 공급 위치의 변경에 따른 매연생성 특성을 측정할 결과를 보여준다. 화염의 높이에 따른 매연생성 특성이 case 1, 3, 7 모두 비슷한 것을 알 수 있다.

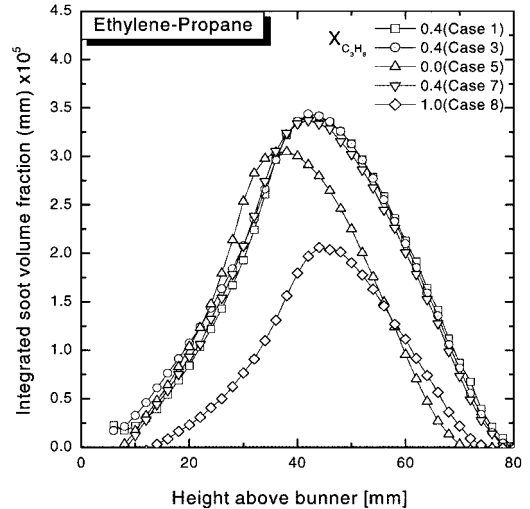


Fig. 5 Integrated soot volume fractions of ethylene/ propane mixture flames (cases 1, 3, 5, 7 and 8)

Fig. 6은 화염 높이가 15 mm에서 측정된 적분된 매연 체적분율로부터 Abel 변환을 통하여 계산된 반경방향 매연체적분율(f_r) 분포를 보여주고 있다. 프로판 혼합분율이 $X_{C_3H_8} = 0.1$ 인 경우인 case 2, 4 및 6을 비교하면 프로판이 내부 노즐로 공급되는 case 4에서 매연체적분율이 가장 크게 나타났으며 프로판이 외부 노즐로 공급되는 case 2에서 가장 적게 나타났다. Case 2, 4에서 나타나는 매연체적분율의 최댓값은 case 5, 6의 값보다 항상 안쪽에 나타나는 것이 관찰되었다. 이는 연료의 공급이 성층화 되면 매연 생성지역이 화염면에서 열분해가 일어나는 지역으로 약간 이동한다는 것을 의미한다. 따라서 혼합연료의 매연상승효과는 혼합분율 뿐만 아니라 혼합되는 과정에 의해서도 영향을 받는다는 것을 알 수 있다. Fig. 7은 화염 높이가 25 mm에서의 반경방향 매연체적분율 분포를 나타내고 있다. 화염높이가 15 mm에서 발생한 차이가 계속하여 유지되고 있는 것을 알 수 있으며, 특히 프로판이 내부노즐로 공급되는

case 4의 경우 매연생성지역이 계속하여 가장 내부에 존재하였다.

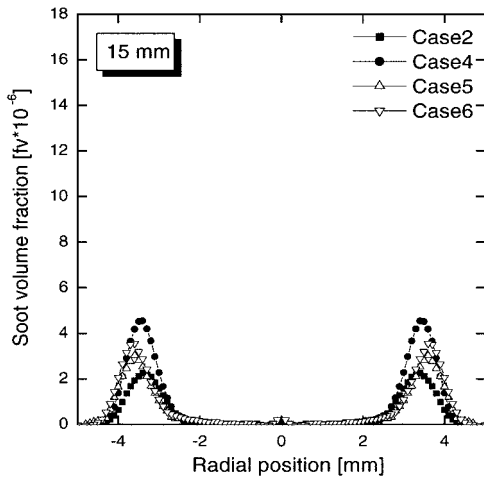


Fig. 6 Radial soot volume fraction profiles of ethylene and ethylene/propane mixture flames at flame height of 15 mm

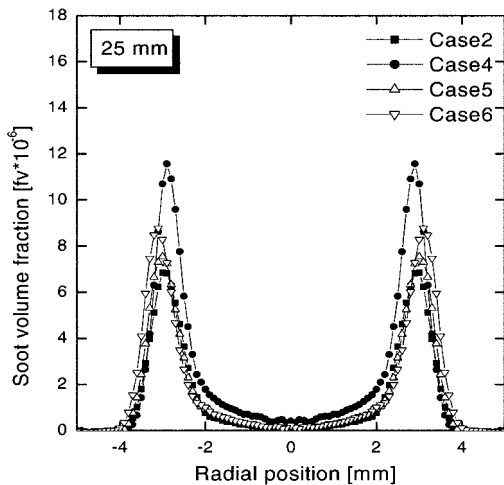


Fig. 7 Radial soot volume fraction profiles of ethylene and ethylene/propane mixture flames at flame height of 25 mm

Fig. 8은 화염 높이 15 mm에서 반경방향으로 측정된 case 2, 4, 5, 6의 PAH 분포를 보여주고 있다. 매연체적분율의 결과와 마찬가지로 매연이 가장 많이 발생한 경우인 $X_{C_3H_8} = 0.1$, case 4에서 PAH의 농도가 가장 높고 매연의 발생이 가장 적은 case 2에서

PAH의 농도가 가장 낮았다. 따라서 매연 체적분율과 PAH의 농도의 경향이 잘 일치하는 것을 알 수 있었다. 또한 case 4에서 PAH 농도가 최대가 되는 위치는 case 6보다 안에서 관찰되었으며, 이는 혼합연료의 매연상승효과에 대한 연료 공급 성층화의 영향이라고 생각된다.

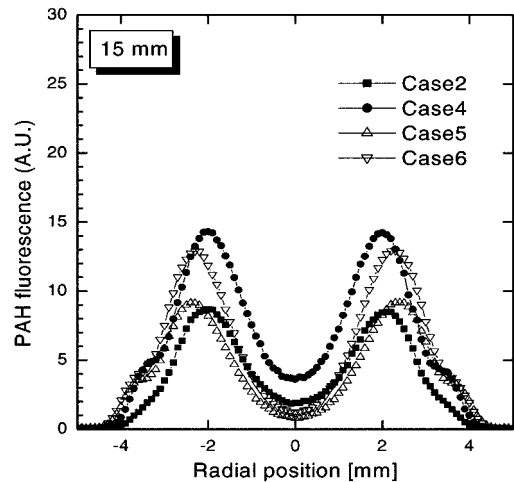


Fig. 8 Radial profiles of PAH fluorescence signals of ethylene and ethylene/propane mixture flames at 15 mm flame height

혼합연료의 혼합 방법에 따라 매연생성 상승효과의 정도가 달라지는 결과는 Fig. 9의 개념으로 이해될 수 있다. 프로판이 외부 노즐(case 2)로 공급되면 외부에는 프로판의 농도가 내부에는 에틸렌 농도가 높게 된다. 따라서 프로판의 산화과정에서 많이 생성된다고 알려져 있는 C_3 화학종의 농도는 바깥쪽에서, 에틸렌의 산화과정에서 많이 생성되는 C_2H_2 의 농도는 안에서 높게 되고 결과적으로 PAH는 바깥쪽인 화염면 부근에서 많이 형성된다. 따라서 이 지역에서 생성된 PAH는 쉽게 산화되고 매연생성에는 크게 기여하지 못할 수 있다. 반면에 프로판이 내부 노즐로 공급되는 경우(case 4)에는 C_3 화학종과 C_2H_4 가 각각 안쪽과 바깥쪽에 많이 분포하고 상대적으로 안쪽에 형성된 PAH는 산화보다는 매연생성에 참여하는 것으로 생각된다. 이는 PAH 농도가 case 4에서 가장 높고 case 2에서 가장 낮게 측정된 결과와도 일치한다.

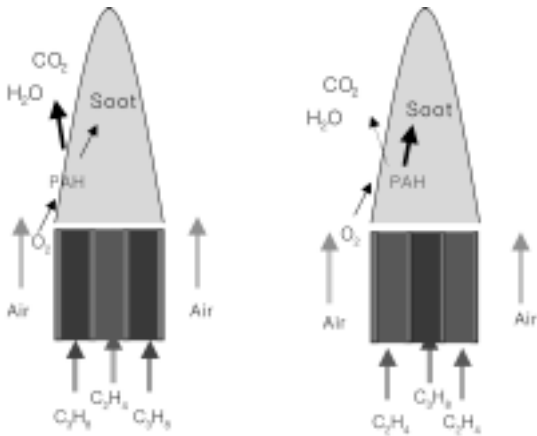


Fig. 9 The concepts of PAH formation in ethylene/ propane diffusion flames of case 2 (left) and case 4 (right)

적분된 매연체적분율이 다르게 나타난 case 2, 4, 5, 6 각각에 대하여 화염 높이 15, 25 및 35 mm에서 광산란 신호, 매연 입자 직경(D_{30})과 수밀도(N)를 측정하였다. Fig. 10은 화염 높이 25 mm 위치에서 측정된 광산란 신호, 매연 입자 직경 및 수밀도의 예를 나타내고 있다. 광산란 신호는 일반적으로 매연체적분율과 유사한 경향을 보여주었다. 매연 입자 크기는 화염 높이에 따라 전체적으로 크게 증가하고 있으며, case 2보다 case 4에서 더 크게 나타났다. 수밀도 역시 case 2보다 case 4에서 더 높게 나타났다. 이와 같은 경향은 15 mm 와 35 mm 에서도 대체적으로 비슷하였다.

Figs. 11~13은 화염 높이 15, 25 및 35 mm에서 매연체적분율이 가장 큰 값을 갖는 위치에서 측정된 매연체적분율, 매연 입자 크기 및 수밀도를 보여주고 있다. 모든 높이에서 case 4의 매연체적분율이 case 2 보다 크다는 것을 알 수 있다. 이때 화염 높이 15 mm 에서는 매연입자의 크기, 25 mm 에서는 매연 입자의 크기와 수밀도, 35 mm 에서는 수밀도의 증가가 매연체적분율의 증가에 가장 큰 역할을 한 것으로 나타났다.

4. 결론

확산화염의 연료 혼합에 따른 매연생성 특성을 알아보기 위하여 이중동축류 버너를 사용하여 에틸

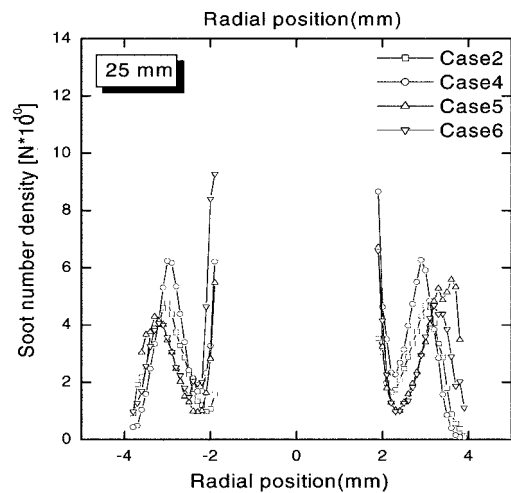
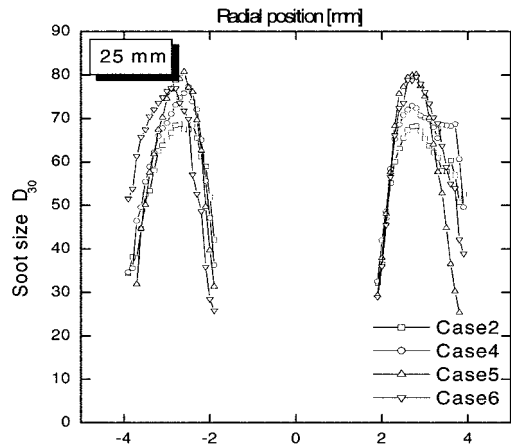
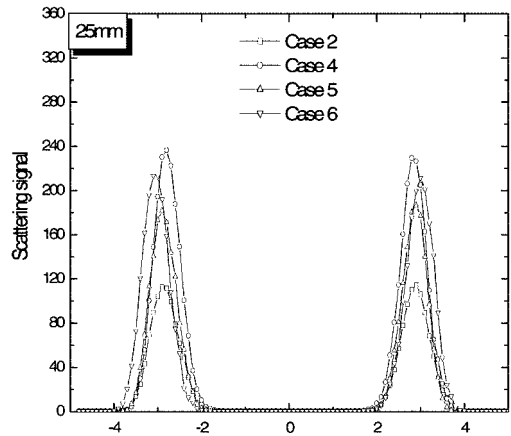


Fig. 10 Radial distribution of ethylene and ethylene/propane mixture flames at flame height of 25 mm

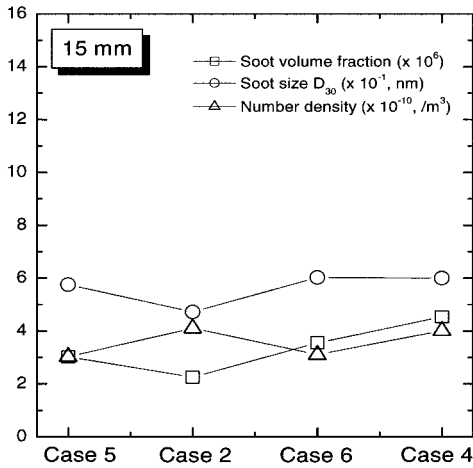


Fig. 11 Soot volume fraction, soot particle size (D_{30}), and number density obtained at the radial position of maximum soot volume fractions at 15 mm flame height

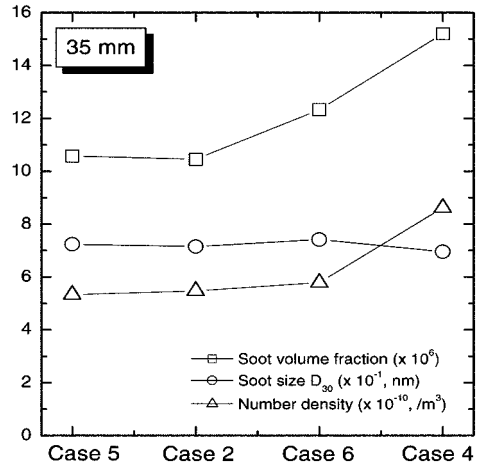


Fig. 13 Soot volume fraction, soot particle size (D_{30}), and number density obtained at the radial position of maximum soot volume fractions at 35 mm flame height

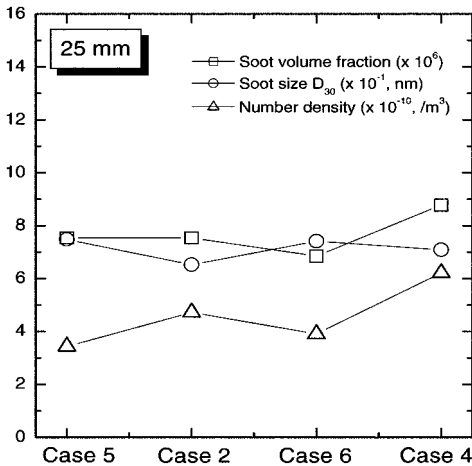


Fig. 12 Soot volume fraction, soot particle size (D_{30}), and number density obtained at the radial position of maximum soot volume fractions at 25 mm flame height

렌/프로판을 성층화하여 혼합하고 이에 따른 매연 생성 상승효과와 관련된 실험을 수행하였다. 매연 체적분율, PAH 농도, 광산란 신호, 매연 입자 크기 및 수밀도를 측정된 결과 다음을 알 수 있었다.

- 1) 에틸렌과 프로판을 성층화하여 혼합하는 방법에 따라 매연생성특성이 변화였다. 프로판이 내부 노즐로 공급되면 매연체적분율과 PAH 농도가 모두 에틸렌/프로판 혼합연료를 단일노즐로 공

급하는 경우보다 높게 나타났다. 반면에 프로판이 외부노즐로 공급되면 단일노즐로 공급되는 혼합연료의 경우보다 매연과 PAH 농도가 더 낮게 나타났다.

- 2) 성층화시킨 혼합연료의 실험 결과로부터 에틸렌/프로판 혼합연료 확산화염에서 발생하는 매연 생성 상승효과에 대한 C_3 화학종의 역할을 확인할 수 있었다. 특히 매연 전구물질인 PAH의 생성 위치에 따라 매연의 생성이 증가 또는 감소하는 것으로 나타났다.
- 3) 혼합된 연료를 사용하는 확산화염에서는 연료의 혼합뿐만 아니라 연료를 혼합하는 방법에 따라서도 매연생성 특성이 영향을 받을 수 있다는 것을 알 수 있었다.

후 기

이 논문은 2003년도 단국대학교 대학 연구비의 지원으로 수행된 연구 내용입니다.

References

- 1) S. Goto, H. Furutani and R. D. Delic, "Dual-fuel Diesel Engine using Butane," SAE 920690, pp.167-172, 1992.

- 2) T. Murayama, N. Miyamoto, T. Yamada, J. Kawashima and K. Itow, "A Method to Improve the Solubility and Combustion Characteristics of Alcohol-Diesel Fuel Blend," SAE821113, pp.3485-3503, 1982.
- 3) A. Kawaguchi, Y. Sato, H. Yanagihara and T. Ishiguro, "A Study of Soot Formation Processes in a Dual Fueled Compression Ignition Engine," SAE922304, pp.1-7, 1992.
- 4) B. M. Kang, H. C. An, T. W. Lee, S. S. Chung and J. Y. Ha, "A Study on Reduction of Harmful Exhaust Gas with Diesel-Methanol Stratified Injection System in a Diesel Engine," Transactions of KSAE, Vol.10, No.4, pp.43-50, 2002.
- 5) H. Bockhorn (editor), Soot Formation in Combustion-Mechanisms and Models, Springer-Verlag, Berlin, 1994.
- 6) I. M. Kennedy, "Models of Soot Formation and Oxidation," Prog. Energy Combust. Sci., Vol. 23, pp.95-132, 1997.
- 7) J. Y. Hwang, S. H. Chung and W. Lee, "Effects of Oxygen and Propane Addition on Soot Formation in Counterflow Ethylene Flames and the Role of C3 Chemistry," 27th Symp. Int. on Combustion, pp.1531-1538, 1998.
- 8) 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, Vol. 114, pp.370-380, 1998.
- 9) R. J. Santoro, H. G. Semerjian and R. A. Dobbins, "Soot particle Measurement in Diffusion Flames," Combust. Flame, Vol. 51, pp.203-218, 1983.
- 10) A. D'Alessio, "Laser Light Scattering and Fluorescence Diagnostics of Rich Flames Produced by Gaseous and Liquid Fuels," in Particulate Carbon Formation during Combustion, D. C. Siegla. and G. W. Smith(editors), Plenum Press, pp.207-260, 1981.