

< 논문 >

메탄/공기 층류 부분에혼합화염의 상세 라디칼(OH*, CH*, 그리고 C2*) 정보와 배기배출물에 관한 실험적 연구

정용기* · 오정석* · 전충환** · 장영준*
(2004년 10월 21일 접수, 2004년 12월 17일 심사완료)

Detailed Local Chemiluminescence Measurement (OH*, CH* and C2*) and Nitrogen Oxides Emissions in Laminar Partially Premixed CH4/Air Flames

Yong Ki Jeong, Jeong Seog Oh, Chung Hwan Jeon and Young June Chang

Key Words: Partially Premixed Flame(부분에혼합화염), Flame Structure(화염구조), Chemiluminescence(자발광), EINO_x(질소산화물 배기배출지수)

Abstract

An experimental study was performed to investigate the effects of partially premixing, varying the equivalence ratios from 0.79~∞, on NO_x emissions and chemiluminescence of excited OH*, CH*, and C₂* radicals in laminar partially premixed flames. the signal from the electronically excited state of OH*, CH*, and C₂* was detected through a band pass filter with a photo multiplier tube, which are processed to the intensity ratio (C₂*/CH*, C₂*/OH*, and CH*/OH*) to reveal the correlation with local equivalence ratio. And measurements of NO_x emission were made to investigate the relationship between visible flame appearance, chemiluminescence, and EINO_x. The results demonstrated that (1) the flames at Φ<1.59 exhibited classical double flame structure, at Φ>4.76, the flames exhibited diffusion flame structure, and the intermediate flames at 1.59<Φ<4.76 was a merged flame, (2) the OH* peak was located inside the CH* and C₂* radical for all measured conditions and the emission intensity ratio of C₂*/CH* and C₂*/OH* were identified as good marker for local equivalence ratio over a range of Φ=0.79~1.2 and CH*/OH* is 0.79<Φ<1.9. However, it was difficult to predict the equivalence ratio in partially premixed flames using this system for Φ>2.38, (3) the minimum NO_x emission index (EINO_x) is obtained for a equivalence ratio of 3.19 in the intermediate flames.

기호설명

φ : 당량비
d₀ : 노즐 출구직경
L_f : 가시화염길이
I_r : 자발광 강도
r_c : 반경방향 거리

V : 혼합기의 유속
Fr : 프라우드 수 (V²/gd₀)
Re : 레이놀즈 수 (Vd₀/ν)

1. 서론

부분 예혼합화염은 연소이전에 연료와 산화제가 부분적으로 예혼합되는 화염으로, 당량비 관점에서 볼 때, 이론공연비와 확산화염의 중간의 농후한 상태의 혼합기를 의미하며 국소적으로 연료 분포의 불균일함을 나타내기도 한다. 이러한 부분 예혼합화염은 희박연소에 비해 화염안정성이 높고 확산화염에 비하여 배기배출 수준이 낮

* 책임저자, 회원, 부산대학교 기계공학부
E-mail : changyj@pusan.ac.kr
TEL : (051)510-2332 FAX : (051)512-5236
* 부산대학교 대학원 기계공학과
** 회원, 부산대학교 기계공학부, 기계기술연구소

은 장점이 있다.^(1,2)

이와 같은 활용성과 장점으로 인하여 부분 예혼합화염에 대한 연구는 오랜기간 많은 연구자들에 의해 수행되어 왔다.

Gore와 Zhan⁽¹⁾은 층류부분예혼합화염을 대상으로 내부관의 공기를 증가시킴으로서 당량비의 변화에 따라 EINO_x가 최소가 되는 영역의 존재를 확인하였고, 또한 난류부분예혼합 화염을 대상으로 한 결과에서도 비슷한 경향이 확인되었다. 즉 이것은 실제연소기에서 부분예혼합화염을 변화함으로써 NO_x를 최소화할 수 있는 영역이 존재함을 의미한다. 이와관련하여 NO_x와 밀접한 관계가 있는 OH 라디칼과 CH 라디칼과 관련한 연구도 진행되어져 오고 있다.

Kojima, Ikeda 등^(3,4)은 층류와 난류화염에서 국소지점과 전체 화염의 자발광 배출특성과, 자발광비와 당량비와의 관계에 대하여 연구하였다. 이의 결과로 OH*, CH*, C₂* 등이 대기압-상온의 메탄 연소조건에서 이론공연비 부근에서 최고 강도값을 가지며, C₂*/CH*, C₂*/OH* 그리고 CH*/OH* 등의 자발광비가 $\phi = 0.8 \sim 1.5$ 의 영역에서 선형적으로 증가함을 밝혀냈다. 이러한 연구 결과들은 다른 여러 연구자들에 의해 확인 되었으며,⁽⁵⁾ 내연기관에서의 국소당량비 측정,⁽⁶⁾ 가스터빈에서의 연소상태진단⁽⁷⁾ 등으로 응용하기 위한 연구가 진행되고 있다.

자발광의 정성적인 연구와 함께 라디칼에 대한 정량적인 측정도 병행되고 있다. OH*와 CH*는 반응영역(reaction zone)과 열방출(heat release)의 지표로 그리고 최고 강도점은 화염면(flame sheet) 부근에 위치하므로 화염의 구조와 국소적인 연료의 산화과정을 설명하는데 쓰이고 있으며,^(8,9) 또한 NO PLIF과 함께 NO_x 형성과정을 설명하는 연구도 수행되고 있다.⁽¹⁰⁾

Higgins 등^(11,12)에 따르면 자발광은 온도와 압력의 함수로서, 메탄 연소에서 온도와 당량비가 증가 할수록($\phi = 0.66 \sim 0.86$) 그리고 압력은 감소할수록($P = 0.5 \sim 2.5 \text{MPa}$) 자발광 신호의 강도는 커짐을 실험과 수치해석으로 연구하였는데 이러한 온도와의 상관관계는 열적 NO 생성 메카니즘(thermal NO mechanism)이 온도에 관계하므로 배기배출물에 대한 연구⁽¹³⁾와 중간생성물에 대한 연구⁽¹⁾로도 이어진다.

위의 선행연구들은 특정 당량비 영역에 한정되어

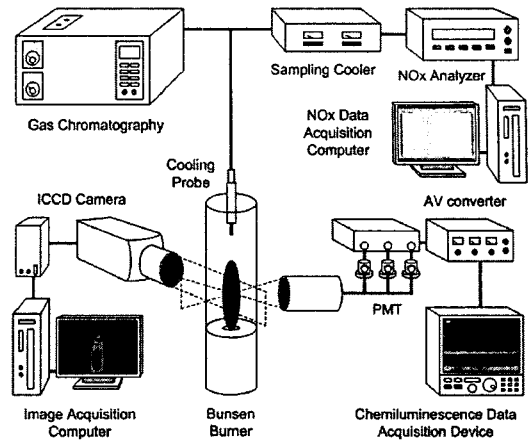


Fig. 1 Schematic of the experimental setup

있거나 국소영역에서의 자발광(chemiluminescence), 형광(fluorescence), 화학종(major and minor species)과 온도분포(local temperature distribution) 등에 머물러 있으며, 아직 자발광 특성을 이용한 화염구조와 배기배출물과의 관계를 부분 예혼합화염의 전 영역에 걸쳐 설명하려는 시도는 드물다. 본 실험에서는 앞서 서술한 선행연구의 일환으로서 메탄/공기 동축류 층류 부분 예혼합화염을 대상으로 당량비와 자발광 강도와의 관계를 연구하고자 한다.

따라서 본 연구의 목적은 동축류 메탄/공기 부분 예혼합화염의 당량비 변화에 따른 화염구조의 변화와 OH*, CH* 그리고 C₂* 라디칼에 관한 상세한 분석과 이와 관련한 EINO_x의 최소화 메카니즘과의 관계규명이다.

2. 실험방법

2.1 실험장치

실험에 사용된 장비의 계략도는 Fig. 1과 같으며 실험장치는 크게 세부분으로 나뉘어진다.

먼저 부분 예혼합화염이 구현되는 분젠버너(Bunsen burner)부로서 혼합기가 나오는 노즐의 내경이 8mm이고, 이를 96mm의 이차공기가 나오는 세라믹 허니콤(ceramic honey-comb)이 감싸고 있다. 이차공기 공급은 연소시 외부 유동에 대해 화염이 떨리지 않고 안정적으로 연소하는데 도움이 된다. 또한 자발광 측정시 버너의 림에서 반사광을 줄이기 위해 노즐의 출구는 버너 출구에서 100mm 높였으며, 원통형 석영관(D=93mm, t=4mm, H=500mm, $\lambda = 200 \sim 2000 \text{nm}$)을 씌워

(confined) 사용하였다. 광의 강도는 썩우지 않은 (unconfined) 경우에 비해 최고 강도값이 10% 줄어들었으며 화상의 외곽은 거의 없었다.

PMT(Photo-Multi-Tube)를 이용한 1차원 점측정 (1 dimensional point measurement)시 초점에서의 수차를 줄이기 위해 비구면 볼록 렌즈(Aspherical plano convex lens; λ=200~2000nm; SIGMA KOKI, SLSQ-50-400P) 2개와 광파이버(optic fiber, D=1.22mm)를 사용하였으며 자발광 파장에 따라 초점거리를 달리 하였다. OH*(0,0), CH*(0,0) 및 C₂*(0,0) 밴드의 자발광을 획득하기 위하여 각각 307.1±1.5nm, 430.7±2nm, 514.6±2nm의 간섭필터 (interference filter)를 사용하였다.^(3,4)

그리고 NO_x와 CO₂ 등의 배기배출물 측정을 위하여 NO_x 분석기와(Teledyne instruments Inc., M-200AH), GC(Gas-Chromatograph; Hewlett- Packard, HP5890 II)를 사용하였다. 배기가스 취득시 프로브 (acquisition probe, D=2mm, L=450mm)의 끝단에서 NO의 산화를 막기 위하여(quenching) 상온의 냉각수를 사용하였으며, 측정위치는 선행연구⁽¹⁴⁾를 참고하여 반경방향으로의 농도가 일정해지는 화염높이의 두 배로 하였다.

2.2 실험조건

예혼합연소를 이루기 위한 혼합기는 메탄 (99.95% CH₄)과 건공기(dry air; 79%N₂, 21%O₂)를 사용하였으며, 당량비는 볼유량계(rota-meter)와 MFC(Mass-Flow-Controler)를 사용하여 메탄을 고정된 상태에서 건공기를 주입하여 조절하였다. 이 때 당량비 증가에 따라 노즐 내경을 기준으로 한 Fr수와 Re수는 감소하며, 이차공기는 55slpm

Table 1 Experimental conditions

Parameter	Range
φ	0.79 ~ ∞
V [cm/sec]	6.63 ~ 86.21
Fr	0.06 ~ 9.48
Re	26.39 ~ 431.04

Q_{fuel} = 200 [cc/min]
 Q_{pri.air} = 0 ~ 2400 [cc/min]
 Q_{sec.air} = 55 [slpm]

으로 고정하였다.

Table 1에 상세한 실험조건을 나타내었다.

실험범위의 설정은 회박화염에서부터 확산화염에 이르기까지 전 범위에 걸쳐 수행하였으며 φ =0.79 미만의 조건에서는 공기량의 증가와 연료량의 상대적 감소로 인한 연소불안정(flame instability)으로 소염(blow-off)되었다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1 화염형상 및 화염길이

Fig. 2는 당량비 증가에 따른 화염형상의 변화와 화염길이의 변화를 보여주고 있다.

당량비 증가에 따라 화염형상은 예혼합화염구조, 혼합구조(hybrid), 그리고, 확산화염구조로 분류되어 질 수 있다. 당량비가 이론공연비 근처의 값을 가지는 예혼합화염구조 구간에서는 당량비 증가에 따라 가시화염길이 가 급속하게 상승하였다. 혼합구조에서 확산화염구조로 갈수록 화염길이의 상승이 둔해지는 것으로 나타났다.

그래프의 상단에 각 화염구조의 대표적인 직접 사진을 나타낸다.

φ<1.59 [Fig. 2(a)]의 영역에서는 내부예혼합화염과 외부 비예혼합화염이 공존하는 이중화염구

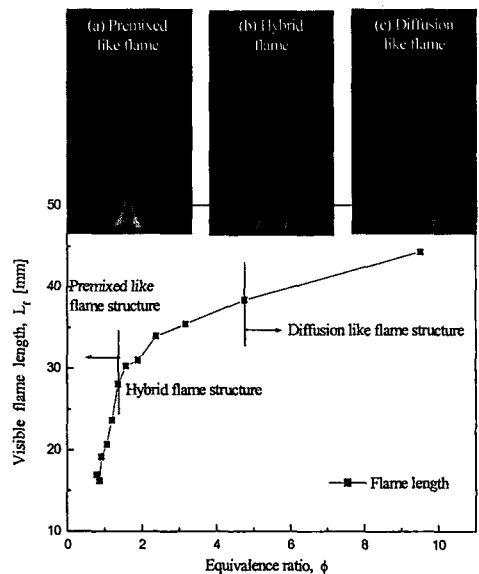
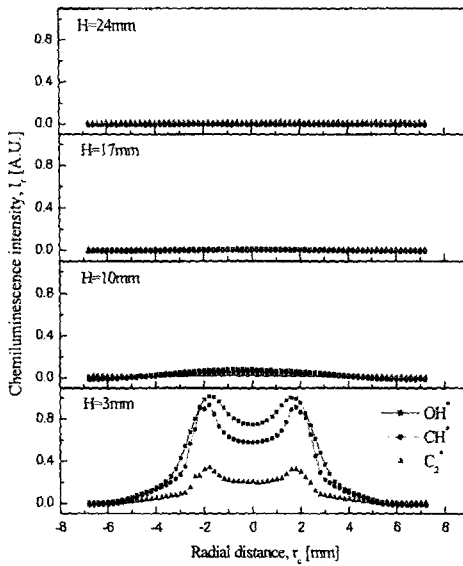
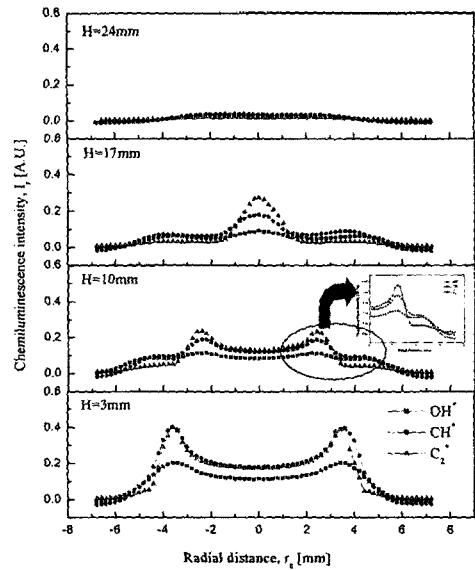


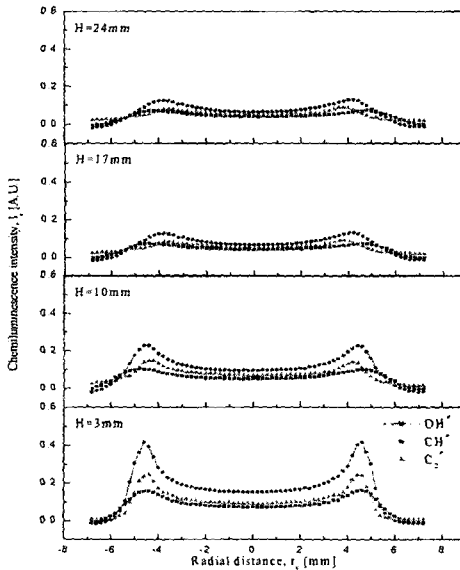
Fig. 2 Photographs of visible appearance and flame length from premixed to diffusion flame



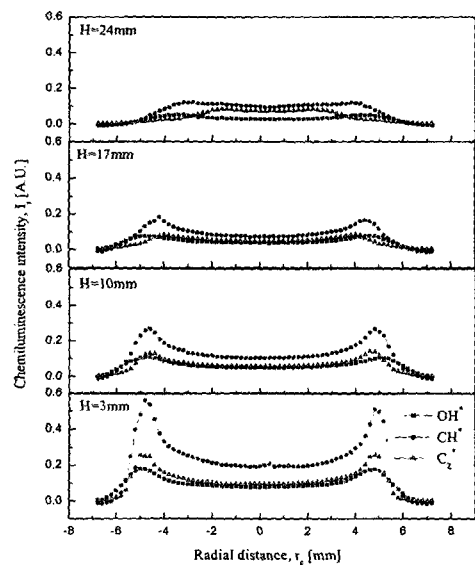
(a) $\Phi=0.86$



(b) $\Phi=1.36$



(c) $\Phi=3.17$



(d) $\Phi=9.52$

Fig. 4 OH*, CH*, and C₂* emission intensity distributions at equivalence ratio of (a) 0.86, (b) 1.36, (c) 3.17, and (d) 9.52

동일한 결과를 보였다.

보다 자세한 관찰을 위해 Fig. 4(b)에 라디칼 분

포를 확대하여 나타내었다. 높이 10mm의 경우 내부화염면에 라디칼이 상당히 높게 나타나고,

외부화염면은 다른 주위 라디칼보다 약간 상승하는 화염면을 관찰할 수 있다. 내부화염면의 라디칼 최고치는 농후한 지역에서 CO, H₂, 그리고 C₂H₂를 내놓는 연료산화와 관계 있고, 실제적으로 NO 생성에는 중요한 역할을 하지 못한다. 반면에 외부화염면의 라디칼 최고치는 과농한 예혼합화염에서 확산화염으로 변화는 아세틸렌(C₂H₂)의 생성경로에 의해 그 원인이 나타난다. 그리고 대부분의 NO_x는 두 번째 최고치가 발생하는 지역에 나타나게 된다.⁽¹⁾

Fig. 4(c)는 $\phi=3.17$ 인 경우의 각 높이에 따른 화염구조를 보여준다. Fig. 4(c)는 이론공연비 근처의 화염과는 달리 이중화염구조가 불분명해지고 있다. 즉 내부화염면이 외부화염면으로 흡수되어 없어지는 것이다. Fig. 4(d)는 $\phi=9.52$ 의 경우로 확산화염구조를 나타낸다. OH*와 C₂* 라디칼은 상대적으로 약간 과농한 영역에 비하여 그 강도가 줄어들었지만 반대로 CH*은 계속 상승하는 것으로 나타났다.

3.3 자발광 강도와 강도비

각 자발광 강도와 당량비 사이의 상관관계를 연구하기 위하여 반응영역에 존재하는 OH*, CH*, 그리고 C₂* 의 최고 강도값을 당량비 변화에 따라 Fig. 5(a)-(b)에 나타내었다.

Fig. 5(a)는 $\phi=0.79\sim\infty$ 에서의 자발광의 최고강도값을 나타내었고, Fig. 5(b)에서는 보다 정확한 결과를 확인하기 위하여 이론공연비 부근의 최고강도값을 나타내었다. OH*, CH*, 그리고 C₂* 각각의 자발광은 $\phi=0.86, 0.91, 1.06$ 순서대로 최고강도값을 가졌으며 이는 Kojima 등⁽³⁾의 결과와 유사하였다. 이 결과는 당량비에 따른 OH*, CH*, C₂* 자발광 강도의 변화를 보여준다. 아울러 자발광은 온도와 압력의 함수임으로 앞으로 온도와 관련한 연구가 수행되어야 할 것으로 사료된다.

자발광 강도가 당량비에 민감한 반응을 보임으로 인해 수소나 메탄을 연료로 하는 화염에서 자발광 강도비 (C₂*/CH*와 C₂*/OH*)가 당량비와 거의 선형적인 관계를 가지고 있다고 여러 논문에서 보고되고 있다.⁽³⁻⁵⁾

본 연구에서는 당량비 영역을 희박한 영역에서부터 확산화염영역까지 확장하여 화염전파면에서 당량비와 자발광 강도비사이의 관계를 연구하였다. Fig. 6(a)-(b)는 종류 부분예혼합화염을 대상으

로 당량비에 따른 라디칼 강도비(C₂*/CH*, C₂*/OH*, 그리고 CH*/OH*)를 나타내었다. (a)는 부분예혼합화염 영역 전체에 대하여 수행하였고, (b)는 보다 정확한 분석을 위해 희박영역부터 약간 농후한 영역에 대하여 라디칼 강도비와 당량비 관계를 조사하였다.

Fig. 6(b)에서 볼 수 있듯이 $\phi=0.79\sim 1.19$ 에서 C₂*/CH*와 C₂*/OH*가 선형적인 관계를 나타냈고, CH*/OH*의 경우에는 $\phi=0.79\sim 1.9$ 에서 선형적인 관계를 보였으며 C₂*/CH*와 C₂*/OH*에 비하여 더 넓은 범위에서 선형성을 가진다. 또 다른 흥미로운 사실은 CH*/OH*는 당량비 1.9를 기준으로 상대적으로 1.9보다 희박한 영역에서는 여러 논문에서 확인했던 결과와 동일하게 선형적으로 나타났지만 상대적으로 농후한 지역에서는 당량비 증가에 따라 그 구배가 완만하게 나타났다. 일정당량비를 기준으로 자발광강도비는 전 구역에 선형적인 관계를 가지지는 않는 것으로 나타났다. 이는 자발광 배출특성으로 국소 당량비 측

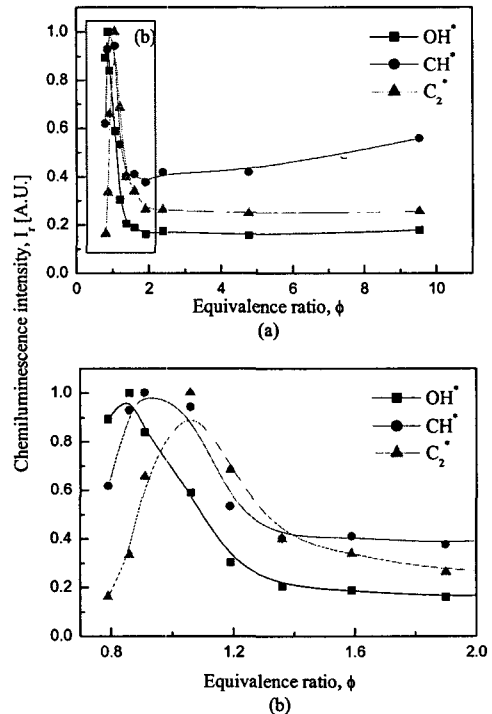


Fig. 5 Relationship between the chemiluminescence intensities and the equivalence ratio

정에 응용을 함에 있어 당량비 영역에 따라 분류해야함을 의미한다.

3.4 배기배출물 특성

Fig. 7 는 부분예혼합화염에서 당량비 증가에 따른 NO_x 배출지수(EINO_x)를 나타낸 것이다. NO_x 배기배출 지수를 나타내기위해 아래와 같은 식을 사용하였으며 EINO_x의 값은 연소시 발생하는 CO₂ 농도에 영향을 많이 받는다. EINO_x는 선행연구를 참고하여 아래의 식 (1)로서 산출하였다.⁽¹⁵⁾

$$EINO_x(g/Kg) = \frac{46.0X_{NO_x}}{(12.01+1.008y)(X_{CO_2} - X_{NO_x})} \cdot 1000 \quad (1)$$

X_i는 화학종 i의 몰분율, y는 연료의 수소와 탄소원자의 몰비(H/C)이다. 위식은 연료가 CO₂로 완전연소 하는 조건에서 성립한다.

EINO_x는 당량비가 0.79에서 급격하게 상승하다가 당량비 1근처에서 약간의 감소를 한 후 다시 ϕ=1.9까지 급격하게 상승을 한다. 반복된 실험의 결과 EINO_x의 최대값을 기준으로 약 ±10%의 오차범위를 나타내었다. 급격한 상승 후 ϕ=2.38~3.17 구간에서 예혼합화염과 확산화염형태의 화

염에 비하여 EINO_x가 작게 나타나며 최저치는 당량비 3부근에서 발생하였다. 이것은 Gore와 Zhan의 결과⁽¹⁾에서 EINO_x 최저치가 ϕ=2.0에서 나타난 것보다 약간 농후한 영역에서 EINO_x가 최소점을 보인다.

이중화염구조를 가지는 당량비가 1.59 이하에서는 EINO_x는 급속(prompt) NO_x와 관련이 있고, 확산화염 구조를 가지는 당량비 4.76 이상에서는 열적(thermal) NO_x와 깊은 관계를 가지고 있다. 화염구조적 측면에서 화염구조가 혼합구조인 구간(1.59<ϕ<4.76)에서 EINO_x가 최소값을 보이며, 이는 급속 NO_x와 열적 NO_x가 상충된 결과로 인해 나타난다.⁽²⁾

4. 결 론

메탄/공기 동축류 부분 예혼합화염의 화염구조와 자발광 배출특성 및 배기배출특성에 대해 연구하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

- (1) 당량비 증가에 따라 화염형상은 예혼합화염 구조, 혼합구조(hybrid), 그리고, 확산화염구조로 분류되어 지며, 화염길이와 화염폭이 증가하였다.
- (2) OH*가 다른 화학종, CH*와 C₂* 보다 중심축에 존재하며, ϕ=1.36인 경우 CH* 마찬가지로 OH*도 이중구조를 나타내는 최고치가 2개 존재하였으며 C₂*도 동일한 결과를 보였다. 하지만 상대적으로 과농한 당량비에서는 이중구조가 보이지 않는다.
- (3) OH*, CH* 그리고 C₂* 자발광은 ϕ=0.86/1.06/1.19 순으로 각각 최고 강도값을 나타냈고, 당량비 ϕ=0.76~1.90의 영역에서 C₂* /OH*와

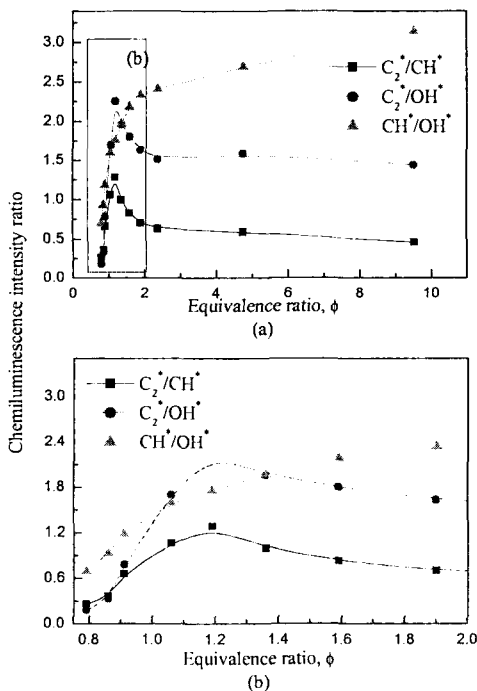


Fig. 6 Correlation of chemiluminescence intensity ratio to equivalence ratio

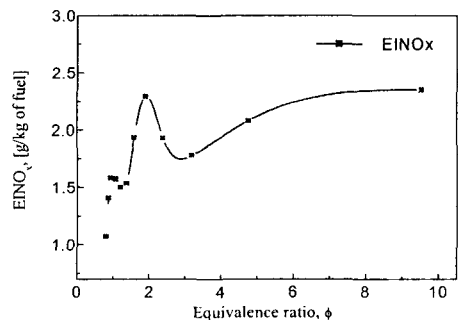


Fig. 7 EINO_x as a function of the equivalence ratio

C_2^*/CH^* , 그리고 CH^*/OH^* 의 자발광 강도비는 선형적으로 비례하였다.

(4) $EINO_x$ 는 $\phi=1.9$ 에서 최고값을 가졌으며, $\phi=3.17$ 에서 최소값을 가졌다. 이후 당량비 증가에 따라 서서히 증가하였다.

참고문헌

- (1) Gore, J. P. and Zhan, N. J., 1996, "NO_x Emission and Major Species Concentrations in Partially Premixed Laminar Methane/Air Co-Flow Jet Flames," *Comb. and Flame*, Vol. 105, pp. 414~427.
- (2) Kim, T. K., Alder, B. J., Laurendeau, N. M. and Gore, J. P., 1995, "Exhaust and In-Situ Measurements of Nitric Oxide for Laminar Partially Premixed C₂H₆-Air Flames: Effect of Premixing Level at Constant Fuel Flowrate," *Combust. Sci. and Tech.*, Vols. 110~111, pp. 361~378.
- (3) Kojima, J., Ikeda, Y. and Nakajima, T., 2000, "Spatially Resolved Measurement of OH*, CH*, and C₂* Chemiluminescence in the Reaction Zone of Laminar Methane/Air Premixed Flames," *Prog. Combust. Inst.* 28, pp. 1757~1764.
- (4) Ikeda, Y., Kojima, J., Nakajima, T., Akamatsu, F. and Katsuki, M., 2000, "Measurement of the Local Flamefront Structure of Turbulent Premixed Flames by Local Chemiluminescence," *Prog. Combust. Inst.* 28, pp. 343~350.
- (5) Docquier, N., Belhafaoui, S., Lacas, F., Darabia, N. and Rolon, C., 2000, "Experimental and Numerical Study of Chemiluminescence in Methane/Air High-Pressure Flames for Active Control Applications," *Prog. Combust. Inst.* 28, pp. 343~350.
- (6) Aleiferis, P. G., Hardalupas, Y., Taylor, A. M. K. P., Ishii, K. and Urata, Y., 2004, "Flame Chemiluminescence Studies of Cyclic Combustion Variations and Air-to-Fuel Ratio of the Reacting Mixture in a Lean-Burn Stratified-Charge Spark-Ignition Engine," *Comb. and Flame*, Vol. 136, pp. 72~90.
- (7) Muruganaadam, T. M., Kim, B., Olsen, R., Patel, M., Romig, B. and Seitzman, J. M., 2003, "Chemiluminescence Based Sensors for Turbine Engines," *39th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit*, 2003-4490.
- (8) Lee, S. Y., Seo, S., Broda, J. C. and Santoro, R. J., 2000, "An Experimental Estimation of Mean Reaction Rate and Flame Structure during Combustion Instability in a Lean Premixed Gas Turbine Combustor," *Prog. Combust. Inst.* 28, pp. 775~782.
- (9) Heberle, N. H., Smith, G. P., Jeffries, J. B., Crosley, D. R. and Dible, R. W., 2000, "Simultaneous Laser-Induced Fluorescence and Rayleigh Scattering Measurements of Structure in Partially Premixed Flame," *Appl. Phys.*, B 71, pp. 733~740.
- (10) Nguyen, Q. V., Dibble, R. W., Carter, C. D., Fiechtner, G. J. and Barlow, R. S., 1996, "Raman-LIF Measurements of Temperature, Major Species, OH, and NO in a Methane-Air Bunsen Flame," *Comb. and Flame*, Vol. 105, pp. 499~510.
- (11) Higgins, B., McQuary, M. Q., Lacas, F., Rolon, J. C., Darabiha, N. and Candel, S., 2001, "Systemic Measurements of OH Chemiluminescence for Fuel-Lean, High-Pressure, Premixed, Laminar Flames," *Fuel*, Vol. 80, pp. 67~74.
- (12) Higgins, B., McQuary, M. Q., Lacas, F. and Candel, S., 2001, "An Experimental Study on the Effect of Pressure and Strain Rate on CH Chemiluminescence of Premixed Fuel-Lean Methane/air Flames," *Fuel*, Vol. 80, pp. 67~74.
- (13) Lyle, K. H., Tseng, L. K., Gore, J. P. and Laurendeau, N. M., 1999, "A Study of Pollutant Emission Characteristics of Partially Premixed Turbulent Jet Flames," *Comb. and Flame*, Vol. 116, pp. 627~639.
- (14) Driscoll, J. F., Chen, R. H. and Yoon, Y. B., 1992, "Nitric Oxide Levels of Turbulent Jet Diffusion Flames : Effects of Residence Time and Damkohler Number," *Comb. and Flame*, Vol. 88, pp. 37~49.
- (15) Turns, S. R., and Myer, F. H., 1991, "Oxides of Nitrogen Emission from Turbulent Jet Flames: Part I -Fuel Effects and Flame Radiation," *Comb. and Flame*, Vol. 87, pp. 319~335.