

## CH<sub>4</sub> 이중 및 정상 분류확산화염에서의 NO<sub>x</sub> 배출 특성 비교

홍승수, 김종현, 이창언  
인하대학교 기계공학과

### Comparison of NO<sub>x</sub> Emission Characteristics of CH<sub>4</sub> Double and Normal Jet Diffusion Flame

Seung-Su Hong, Jong-Hyun Kim, Chang-Eon Lee  
Department of Mechanical Engineering, Inha University

#### 1. 서론

연소시 발생하는 오염물질 중 NO<sub>x</sub>는 심각한 대기오염의 원인이 되는 것으로 알려져 있어, 각종 연소기 등에서 발생하는 NO<sub>x</sub> 저감을 위한 연구가 중요하게 대두되었다. 특히 확산화염은 예혼합화염 및 부분예혼합화염에 비해 NO<sub>x</sub>, Soot 등 오염물질이 발생할 가능성은 높으나 화염 안정성이 좋아 산업용 연소기에 많이 이용되고 있어 보다 다양한 NO<sub>x</sub> 저감 기술의 필요가 요구되고 있다.

분류 확산화염에서의 NO<sub>x</sub> 생성특성에 관한 연구를 살펴보면, 먼저 연료 제트를 동축 공기 제트 유동이 둘러싸고 있는 형상의 정상확산화염(Normal Diffusion Flame ; NDF)에 대한 연구가 주류를 이루고 있다. Smooke<sup>(1)</sup> 등은 실험 및 수치해석 연구를 통해 N<sub>2</sub>로 희석된 CH<sub>4</sub> 분류 확산화염에서의 NO<sub>x</sub> 발생은 Fenimore NO 기구를 포함한 Prompt NO 기구에 의한 것이 지배적임을 보고한 바 있다. 그러나, Kim<sup>(2)</sup> 등은 선행 연구를 통해 CH<sub>4</sub> 분류 화염에서의 NO<sub>x</sub> 발생에 대한 Thermal NO 기구 및 Prompt NO 기구의 기여도는 연료유량에 따라 변화됨을 관찰한 바 있다. Hewson<sup>(3)</sup> 등은 CH<sub>4</sub> 확산화염의 NO<sub>x</sub> 배출특성에 관한 수치연구에서 체류시간이 짧은 화염에서는 화염온도의 감소로 NO 생성이 감소하여 Prompt NO 기구가 지배적이 되며, 긴 체류시간에서는 높은 화염온도로 Thermal NO 기구가 지배적인 NO 생성기구임을 밝히고 있다.

한편, 중심부의 제트에 연료 대신 공기가 분출되고 그 주위를 연료가 둘러싸는 형상의 역확산화염(Inverse Diffusion Flame ; IDF)에 대한 연구가 몇몇 연구자들에 의해 진행되었는데, 역확산화염은 화염의 구조적 특징 때문에 매연입자의 생성 및 성장과정을 주로 연구하고 있다. Partridge<sup>(4-5)</sup> 등은 C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> 역확산화염에서 NO 생성과정에 대한 2차공기의 영향을 연구하여 넓은 당량비 범위에서 2차공기의 혼합이 증가하면 EINO<sub>x</sub>가 감소함을 보고하였고, NO 농도를 측정 한 결과 대부분의 NO는 역확산화염의 Tip에서 생성됨을 확인하였다.

또한 이중확산화염(Double Diffusion Flame ; DDF)은 중심부 및 주위공기 제트가 환형 연료 제트를 둘러싸서 내부에는 역확산화염을, 외부에는 정상확산화염을 형성하는 화염으로, Huang<sup>(6)</sup> 등은 기하학적 형상은 본 연구와 차이가 있지만 이중확산화염에 대한 연구에서 중앙공기 제트의 유동 특성이 화염형상에 크게 영향을 미침을 보고하였다.

그러나 이들 연구결과들은 정상확산화염보다 더 복잡한 화염구조를 가지며 화염형상이 크

계 변화하는 이중확산화염에 대한 연구는 미비한 실정이다.

따라서 본 연구에서는 CH<sub>4</sub> 정상확산화염과 이중확산화염에 대하여 실험 및 수치계산을 수행하여, 각 화염에서의 EINO<sub>x</sub> 경향을 비교 분석하여 화염형상 변화에 따른 일반적인 NO<sub>x</sub> 배출특성을 도출해 보고자 한다.

## 2. 실험방법

본 연구에서는 중심관, 환형관 및 외측원관은 7.4mm, 13.6mm, 50mm로 고정된 동축 삼중관 버너에서 형성되는 정상확산화염 및 이중확산화염을 실험 및 계산 대상으로 하였다. 실험 및 계산에서의 유량조건은 Table 1에 나타내었다.

Table 1 Experimental condition and Boundary condition at nozzle outlet

|     | 중심관(D1)                             | 환형관(D2)                                | 외측원관(D3)                             |
|-----|-------------------------------------|--|--------------------------------------|
| DDF | Air                                 | CH <sub>4</sub>                        | Air                                  |
|     | 15%, 16%<br>17%, 18%<br>19%, 20%    | 0.4 L/min<br>0.6 L/min<br>0.8 L/min    | ※(해당 연료의 이론공연비 공기의 3배유량)-(중심관의 공기유량) |
| NDF | CH <sub>4</sub>                     | Air                                    | Air                                  |
|     | 0.4 L/min<br>0.6 L/min<br>0.8 L/min | ※해당 연료의 이론공연비 공기의 3배 유량을 같은 유속이 되도록 분배 |                                      |

연소가스중의 NO 및 NO<sub>x</sub>의 농도는 급속팽창 프루브를 이용하여 반경방향 NO 농도의 상대변화가 ±2% 이내가 되는 충분한 하류지역에서 연소가스를 샘플링하여, 화학발광법을 이용한 질소산화물 분석기(300-CLD)를 이용하여 측정하였다. CO<sub>2</sub>의 농도는 유입되는 연료가 완전 연소된다는 조건으로부터 계산된 값을 이용하였다. 배출지수는 식 (1) 및 (2)를 이용하여 계산하였다.

$$EI_i = \frac{1000x_i}{x_{CO_2} + x_{CO}} \times \frac{MW_i}{MW_F} \text{ (g/kg)} \quad (1)$$

$$EINO_x = EINO \frac{MW_{NO_2}}{MW_{NO}} + EINO_2 \text{ (g/kg)} \quad (2)$$

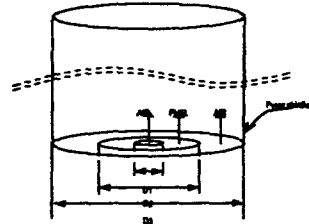


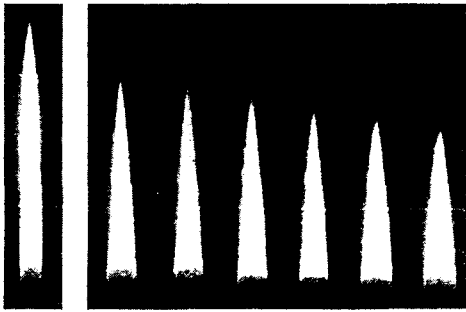
Fig. 1 Triple Concentric Burner

## 3. 수치계산 방법

본 연구의 수치계산에는 층류 분류화염에 대해 계산이 가능한 CLESALF Code<sup>(8)</sup>를 수정하여 사용하였다. 열역학적 물성치 및 화학종의 생성율은 CHEMKIN-II Package<sup>(9)</sup>로, 전달 물성치는 TRANFIT Package<sup>(10)</sup>를 이용하여 계산하였다. 그 외 계산방법에 대한 자세한 내용은 참고문헌(11)을 참조하기 바라며 본 논문에서는 생략하겠다.

계산에 이용된 반응기구는 49개 화학종과 279개의 가역반응으로 구성되어 있는 GRI-2.11 반응기구를 이용하였는데, 이 반응기구는 C1, C2 반응 및 Thermal 및 Prompt NO<sub>x</sub> 반응을 구체적으로 묘사하고 있다. NO<sub>x</sub> 생성에 미치는 Thermal NO 및 Prompt NO기구의 역할을 분리하여 검토하기 위하여 Nishioka<sup>(12)</sup>의 NO<sub>x</sub> 분리법에 따라 Total NO<sub>x</sub>를 Thermal NO<sub>x</sub>와 Prompt NO<sub>x</sub>로 분리하였다.

### 4-1. 실험 결과



NDF 15% 16% 17% 18% 19% 20%  
 Fig. 2 Photographs of NDF and DDFs with variation of the central air flow rate

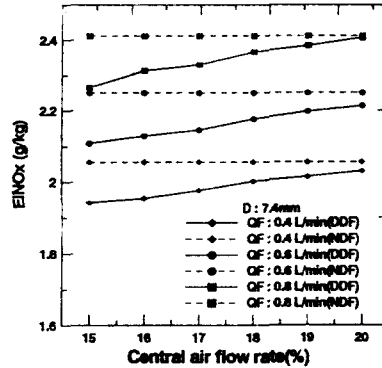


Fig.3 Measured EINOx with the variation of the fuel flow rate

본 연구의 모든 조건에서 중앙공기유량이 해당연료의 이론공연비 공기유량 15~20%에서 이중확산화염의 형상이 뚜렷하게 유지됨을 관찰하였다.

Fig. 2는 CH<sub>4</sub> 연료유량 0.6 L/min에 대한 결과를 대표적으로 도시한 것으로서, 중심관의 공기유량을 증가시켜 동축 삼중관 버너에서 형성된 이중확산화염 및 동일 유량조건에 대한 정상확산화염의 화염형상을 잘 보여주고 있다. 그림에 나타난 화염형상을 살펴보면, 이중확산화염은 정상확산화염에 비해 화염길이가 짧음을 알 수 있으며 내부에 역확산화염, 외부에 정상확산화염이 동시에 존재함을 관찰할 수 있다. 또한 이중확산화염 범위에서는 중앙공기유량이 증가함에 따라 외부 정상확산화염의 길이는 짧아지고, 내부 역확산화염의 길이는 상대적으로 길어지는 것을 볼 수 있다.

Fig. 3은 동일직경의 중심관노즐(D1)에서 중앙공기유량 및 연료유량 변화에 따른 이중확산화염의 EINOx 및 연료유량 변화에 따른 정상확산화염의 EINOx를 도시한 것이다. 이중확산화염에서는 중앙공기유량이 증가함에 따라 EINOx 값이 증가하고 있으며, 전 중앙공기유량 범위에서 정상확산화염 보다 EINOx 값이 낮음을 알 수 있다. 또한 연료유량 변화에 대해서는 이중확산화염 및 정상확산화염 모두 연료유량 증가에 비례하여 EINOx 값이 증가함을 알 수 있다.

그러나 이들 화염에서의 EINOx 경향은 내·외부 화염 크기의 상대적인 변화 및 이로 인한 온도분포변화, 체류시간의 변화 등 다양한 원인에 의한 것이라 사료되며, 상세한 이들의 NOx 생성특성은 다음에 기술하는 수치계산 결과를 이용하여 그 원인들을 분석하고자 한다.

#### 4-2. 수치 결과

Fig. 4는 Fig. 3의 실험결과와 동일한 조건에 대한 수치계산 결과를 도시한 것으로, 계산 결과는 정량적인 측면에서는 실험치 보다 약 2~3배 높게 예측하고 있으나, 이중확산화염에서의 중앙공기유량 및 연료유량 변화에 따른 EINOx 경향 및 정상확산화염에서 연료유량 변화에 따른 EINOx 경향은 실험결과를 정성적으로 잘 예측하고 있음을 알 수 있다. 본 연구의 실험결과와 수치계산 결과의 정량적인 차이는, 계산에서 복사를 고려하지 않은 점과 아직까지 NOx 반응기구에 대한 모델링이 완전하지 않은 점을 들 수 있다. 그러나 본 계산 결과는 실험결과와 경향을 잘 예측하고 있는 것으로 생각되므로, 이 수치계산 결과를 이용하여 NOx 생성경향을 분석하는 것은 충분히 의미가 있다고 할 수 있다.

Fig. 4에서 이중확산화염은 정상확산화염보다 Thermal EINOx는 약간 높은 값을 나타내

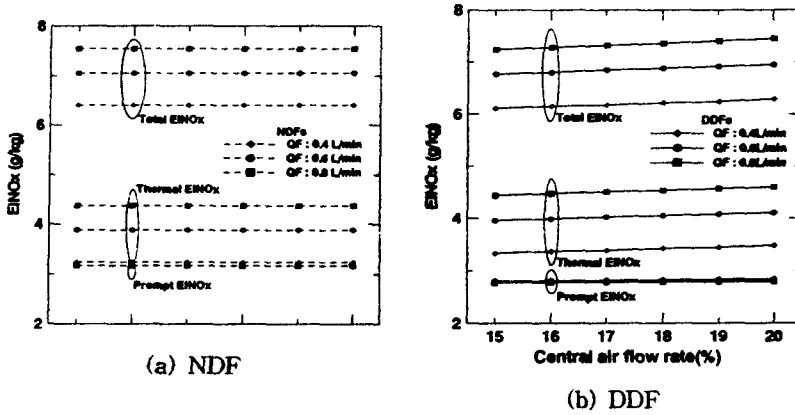


Fig. 4 Computed EINOx of NDF and DDF with variation of fuel flow rate

나, Prompt EINOx의 경우는 더 큰 폭으로 낮은 값을 나타내고 있다. 따라서 정상확산화염에 비해 낮은 이중확산화염의 Total EINOx 경향은 Prompt EINOx의 감소경향으로 설명할 수 있다. 또한 이중확산화염에서 중앙공기유량 변화에 따른 Total EINOx 증가 경향은 Prompt EINOx 값은 거의 일정한 데 비해 Thermal EINOx 증가함으로 설명할 수 있다.

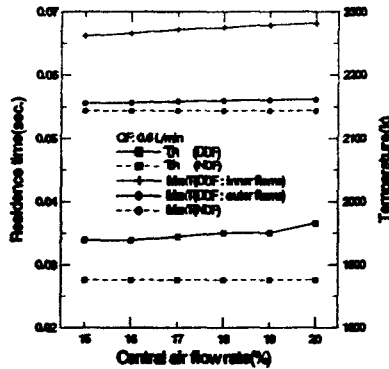


Fig. 5 Computed the residence time and Tmax on centerline of DDF and NDF

Fig. 5는 Thermal EINOx 경향을 설명할 수 있는 중심축 상에서의 최고온도 및 1850K 이상의 영역을 통과하는데 걸리는 고온 체류 시간을 도시한 것으로 이중확산화염의 고온 체류 시간 및 최고온도가 정상확산화염보다 높음을 알 수 있으며, 또한 이중확산화염들에서는 중앙공기유량이 증가함에 따라 고온 체류시간 및 최고온도가 증가함을 알 수 있다.

Fig. 6은 정상확산화염 및 중앙공기유량 변화에 따른 이중확산화염의 NO 농도 등치선을 도시한 것으로, 이중확산화염들의 경우, 중앙공기유량이 증가함에 따라 외부 정상확산화염대의 고농도 영역(Level 5)이 상류로 확장되고 있음을 알 수 있다. 내부 역확산화염대에서도 중앙공기유량이 증가함에 따라 Level 3 영역이 다소 증가하고 있으나, 고농도 영역은 없으며 다소 낮은 농도분포를 보임을 알 수 있다.

Fig. 7은 NO 생성 및 소멸율(mole/cm<sup>3</sup>s)의 등치선을 도시한 것으로, 그림의 오른쪽은 양의 값(NO생성)을 갖는 영역을 나타내며, 왼쪽은 음의 값(NO소멸)을 갖는 영역을 나타낸다. 이중확산화염들은 내부 역확산화염 및 외부 정상확산화염의 두 곳에서 NO 소멸영역이 존재함을 알 수 있으며, 이 소멸영역을 확대칭으로 회전한 체적이 정상확산화염 보다 큼을

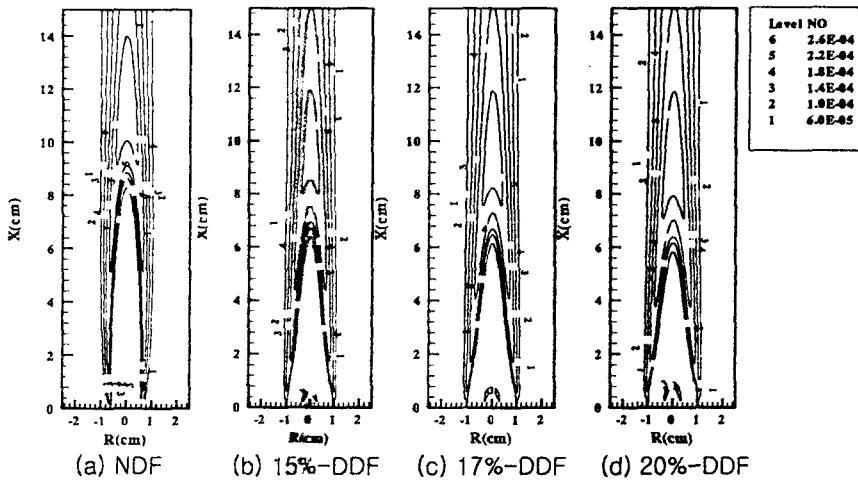


Fig. 6 Computed NO isopleths for NDF and representative DDF

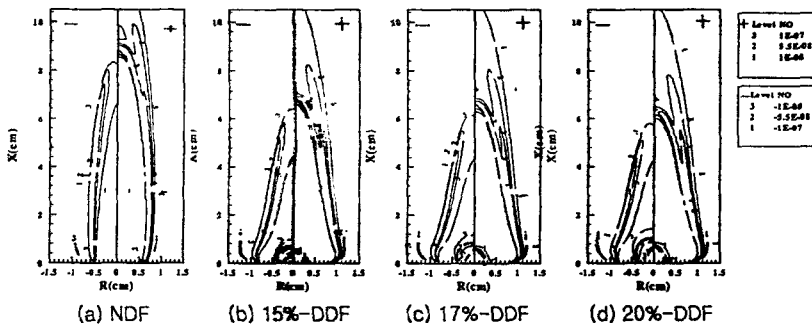


Fig. 7 Computed NO production rate isopleths for NDF and representative DDF

알 수 있다. 또한 이중확산화염들에서는 중앙공기유량이 증가하면 외부 정상확산화염대의 NO 소멸영역은 줄어들으나, 내부 역확산화염대의 소멸영역은 커짐을 알 수 있다. 이와 같은 원인으로 Fig. 4에서 도시한 이중확산화염의 Prompt EINO<sub>x</sub> 값이 정상확산화염에 비해 낮음을 알 수 있으며, 중앙공기유량 변화에 대하여 거의 일정한 Prompt EINO<sub>x</sub> 경향을 잘 설명하고 있음을 알 수 있다. 또한 이중확산화염들의 내부 역확산화염에서는 생성영역보다 소멸영역이 크며, 소멸을 또한 더 큼을 알 수 있으며 이와 같은 이유로 내부 역확산화염이 매우 고온 영역임에도 불구하고 NO 농도가 다소 낮음을 알 수 있다.

## 5. 결론

층류 CH<sub>4</sub> 분류 정상확산화염 및 이중확산화염을 대상으로 실험 및 수치계산을 통해 중앙 공기유량, 연료유량 변화에 따른 NO<sub>x</sub> 배출특성을 비교 검토한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 이중확산화염의 Total EINO<sub>x</sub>는 정상확산화염 보다 다소 낮음을 알 수 있으며, 이는 이중확산화염의 경우 고온영역과 체류시간의 증가로 Thermal EINO<sub>x</sub>는 약간 증가하나, 내·

- 외부 두개의 화염면에서 Prompt NO 소멸영역이 존재하여, Thermal EINOx 증가 보다 더 큰 폭으로 Prompt EINOx가 감소하기 때문이다.
2. 이중확산화염들에서의 Total EINOx 경향은 중앙공기유량이 증가함에 따라 증가함을 알 수 있으며, 이는 내·외부 화염대 NO 소멸영역의 상대적인 크기 변화로 Prompt EINOx는 거의 일정한데 비해, 고온영역의 증가로 Thermal EINOx가 증가하기 때문이다.
  3. 이중확산화염 및 정상확산화염은 연료유량에 비해하여 Thermal EINOx가 증가함에 따라 Total EINOx가 증가하는 동일한 경향을 보인다.

#### 참고문헌

- [1] M. D. Smooke, Y. Xu, R. M. Zurn, P. Lin, J. H. Frank and M. B. Long, "Computational and Experimental Study of OH and CH Radicals in Axisymmetric Laminar Diffusion Flames," 24th Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute, pp. 813-821, 1992.
- [2] 김종현, 오창보, 이창연, "CH<sub>4</sub>-공기 동축 제트화염의 NOx 배출특성에 관한 수치 및 실험적 연구", 대한기계학회논문집B권, Vol.11, 2002
- [3] J. C. Hewson, M. Bollig, "Reduced Mechanisms for NOx Emissions from Hydrocarbon Diffusion Flames", Twenty-Sixth Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute, pp.2171-2179, 1996
- [4] William P. Partridge Jr and Normand M. Laurendeau, "Nitric oxide formation by inverse diffusion flames in staged-air burners", Fuel, Vol.74, No.10, pp.1424-1430, 1995.
- [5] William P. Partridge Jr, John R. Reisel and Normand M. Laurendeau, "Laser-Saturated Fluorescence Measurements of Nitric Oxide in an Inverse Diffusion Flame", Combustion and Flame, Vol.116, pp.282-290, 1999
- [6] Huang, R. F., Yang, J. T. and Lee, P. C., "Flame and Flow Characteristics of Double Concentric Jets," Combustion and Flame, Vol.108, pp.9-23, 1997
- [7] M. E. Coltrin, H. K. Moffat, R. J. Kee and F. M. Rupley, "CRESLAF (Version 4.0): A Fortran Program For Modeling Laminar, Chemically Reacting, Boundary-Layer Flow in Cylindrical or Planar Channels," Sandia Report SAND 98-0478, 1993.
- [8] R. J. Kee, F. M. Rupley and J. A. Miller, "Chemkin-II: A Fortran Chemical Kinetics Package for the Analysis of Gas Phase Chemical Kinetics," Sandia Report SAND 89-8009B, 1989.
- [9] R. J. Kee, G. Dixon-Lewis, J. Warnatz, M. E. Coltrin and J. A. Miller, "A Fortran Computer Code Package for the Evaluation of Gas-Phase Multicomponent Transport Properties," Sandia Report SAND86-8246, 1986.
- [10] Jung Bae Park, Jong Hyun Kim, Chang Eon Lee, "Numerical and Experimental Investigation on NOx Emission Characteristics of CH<sub>4</sub> Jet Flames," 제21회 Kosco symposium 논문집, 2000.
- [11] Jung Bae Park, Jong Hyun Kim, Chang Eon Lee, "Numerical and Experimental Investigation on NOx Emission Characteristics of CH<sub>4</sub> Jet Flames," 제21회 Kosco symposium 논문집, 2000.
- [12] M. Nishioka, S. Nakagawa, Y. Ishikawa and T. Takeno, "NO Emission Characteristics of Methane-Air Double Flame", Combustion and Flame, Vol.98, pp.127-138, 1994