

동축류 확산화염에서 질소첨가가 Soot발생에 미치는 영향

엄재호* · 이종호* · 전중환*** · 장영준**

Dilution and Thermal Effects of N₂ Addition on Soot Formation in Co-flow Diffusion Flame

Jae Ho Eom, Jong Ho Lee, Chung Hwan Jeon and Young June Chang

ABSTRACT

The influence of N₂ addition on soot formation, flame temperature and NO_x emissions is investigated experimentally with methane fuel co-flow diffusion flames. The motivation of the present investigation is the differences in NO_x reduction reported between fuel-side and oxidizer-side introduction of N₂. To determine the influence of dilution alone, fuel was diluted with nitrogen while keeping the adiabatic flame temperature fixed by changing the temperature of the reactants. And to see the thermal effect only, air was supplied at different temperature without N₂ addition. N₂ addition into fuel side suppressed the soot formation than the case of oxidizer-side, while flame temperature enhanced the soot formation almost linearly. These results reveals the relative influences of the thermal, concentration effects of N₂ additives on soot formation. In accordance with experimental study, numerical simulation using CHEMKIN code was carried out to compare the temperature results with those acquired by CARS measurement, and we could find that there is good agreement between those results. Emission test revealed that NO_x emissions were affected by not only flame temperature but also N₂ addition.

Key Words : Soot volume fraction, Dilution fraction, Oxidizer side, Fuel side, N₂ addition, 2D LII, CARS, CHEMKIN, NO_x

기 호 설 명

Q_{fuel}	Fuel flow rate	Z	Dilution fraction
Q_{oxidizer}	Oxidizer flow rate	T_{inlet}	Inlet temperature
L_f	Flame height	T_{ad}	Adiabatic flame temperature

1. 서 론

연소과정에서 발생하는 NO_x나 Soot은 산성비와 광화학 스모그, 돌연변이 유발 및 암 발생의 원인이 된다. 뿐만 아니라 연소실 벽면에 부착되

는 경우 열적 가중으로 인해서 연소장치가 파손되거나 전체적인 효율감소 등 직·간접적인 영향을 미치게 된다. 전 세계적으로 대기오염에 대한 규제가 강화되고 있는 시점에서 이를 극복하기 위하여 다양한 연소 제어기술이 연구되어 왔다. 그 중에서 고온공기 연소(Highly preheated air combustion)는 기존의 배기가스 재순환 연소와 비슷한 방식으로 연소공기를 자발화 온도 이상으로 가열시키고 회석제를 사용하여 화염의 온도를 제어함으로써 배기가스 및 매연배출 특성을 개선

* 부산대학교 기계공학과 대학원

† 연락처 chjeon@pusan.ac.kr Tel) 051-510-3051

** 부산대학교 기계공학부, 기계기술연구소

시키는 방법으로 일본을 중심으로 활발히 연구되어 지고 있다. 현재까지 고온공기연소의 메커니즘이 완전히 규명되지는 않았으며, NOx와 soot의 저감결과를 연료농도와 화염온도의 영향 즉, 희석 효과(dilution effect)와 열적 효과(thermal effect)에서 그 원인을 찾으려는 연구가 계속 진행되고 있는 실정이다.

Axelbaum and Law[1] 등은 대항류 확산화염의 매연발생에 관해 불활성 기체를 첨가하여 희석과 온도영향에 대해서 연구하였으며 이로부터 매연 생성 속도식을 연료물분율과 온도의 함수로 제안하였다.

Gulder[2] 등은 연료와 산화제를 예열하는 방법으로 단일화염온도를 2400K로 일정하게 유지하면서 연료에 산소를 첨가하여 실험을 수행하였으며, 에틸렌뿐만 아니라 프로판 확산화염에 대해서도 첨가된 산소의 화학적 영향에 의하여 매연 생성율이 증가함을 보였다.

Turns[3-4] 등은 동축 분류 확산화염에서 초기 공급온도를 연료 측과 산화제 측에 각각 413K, 398K로 예열하여 질소를 첨가 시켰을 때 각각의 NOx 배출 특성을 실험을 통해서 밝혔으며, Yuan[5] 등은 희석가스의 종류 (질소, 이산화탄소, 아르곤, 헬륨, 연소가스)에 따른 고온공기 연소의 특성연구를 통해 희석가스는 화염온도를 감소시켜 thermal NOx를 저감시킨다는 연구결과를 보고하였다. 이렇게 희석가스를 공급하고 고온공기를 사용하는 방법의 연소에서 나타나는 단일화염온도와 NOx, soot의 저감 및 화염 형상 등을 이해하기 위해서는 미시적 화염구조 관찰이 절실하다 하겠다.

따라서 본 논문에서는 희석가스를 공급하고 고온공기를 이용하는 방법의 연소에서 나타나는 단일화염온도와 NOx, soot의 저감, 화염형상 변화 등을 이해하기 위해서 동축류 확산화염에서 예열 공기온도에 따른 온도의 영향과 연료 측과 산화제 측에 첨가되는 질소에 따른 희석의 영향을

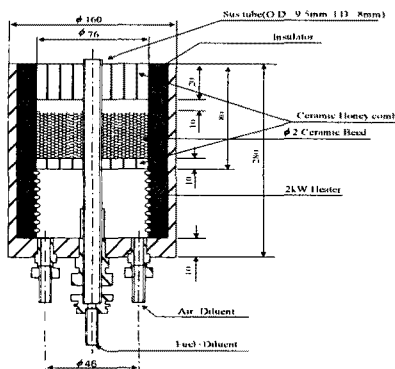


Fig. 1 Schematic of Burner

LII (Laser induced Incandescence) 기법을 이용하여 화염내부에 존재하는 soot 분포를 측정하고, CARS(Coherent Anti-stokes Raman Spectroscopy) 기법을 이용한 반경방향으로의 온도분포를 측정하였으며 CHEMKIN 코드를 통한 비교를 수행하였다. 또한 각 조건에서의 NOx 배출 특성에 대해 관찰해 보았다.

2. 실험 장치

2.1 동축 분류 버너

실험에 사용된 버너의 개략도를 Fig. 1에 나타내었다. 하부에 유동의 층류화를 위해 설치된 세라믹 허니컴의 중앙에 연료노즐이 있고 그 주위에 동축류로 화염의 안정화 및 산화제로서의 공기를 공급할 수 있도록 되어 있다. 그리고 공급공기를 가열시키기 위해서 발열용량 2kW 전열기를 버너와 일체형으로 설치하였으며 공기를 가열한 후 열전달을 통해서 연료를 가열시키게 된다. 전열기의 안전과 공급온도를 일정하게 유지하기 위해서 히터 내부와 버너 출구 단에 K타입 열전대를 설치하여 공급온도를 일정하게 제어하였다. 공급되는 공기와 연료는 하류의 압력변화와 온도변화에도 설정유량을 유지할 수 있도록 MFC(Mass Flow Controller)를 이용하여 공급하였다.

2.2 LII 이미지 측정 장치

LII 실험을 위한 장치도를 Fig. 2에 나타내었으며, 크게 세 부분으로 구성되어 있다. 즉, 신호발생을 위한 Nd:YAG 레이저 (Quentel, YAG 980)의 광원부와 2차원 영상을 획득하기 위한 A/D 변환기, UV렌즈 (Nikon, 105mm,F4.5)와 Narrow band pass filter ($400 \pm 5\text{nm}$)를 장착한

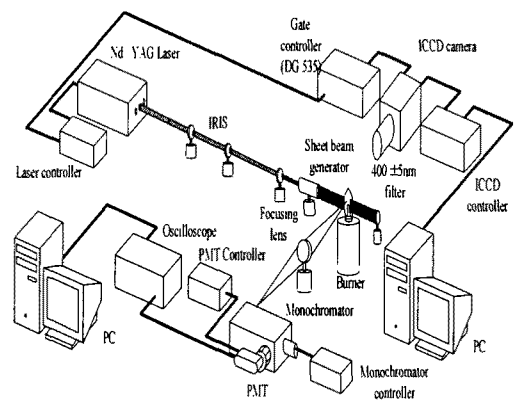


Fig. 2 Schematic of LII system

ICCD (PI,IMAX-512), 점 측정을 위한 단색기 (Monochromator)를 포함하는 영상 및 신호 취득부, 그리고 이렇게 받아들여진 신호와 이미지를 처리하는 데이터 처리부로 구성되어 있다.

2.3 CARS 온도 측정 장치

CARS 기술은 매우 정확한 화염온도 측정기술 중 하나로 여러 논문[6-10]에서 장치의 안정성 및 정확성이 검증되었다. 실험에 사용한 CARS 장치의 개략도를 Fig. 3에 나타내었다. 광대역 이동형 CARS 장치에 사용되는 Nd:YAG 레이저의 이차 고조파는 펄스 당 에너지가 최대 200mJ, 펄스폭은 7~8ns, 반복도는 10Hz이며, 에너지의 대부분은(<80%) 무모드 색소레이저의 펌핑에 사용되어진다. 상자형 위상접합조건에 의해 발생된 CARS 신호는 광파이버를 거쳐서 단색기에 입사되며, 다채널 광분석기에서 스펙트럼이 구해진다. 이렇게 구해진 스펙트럼을 Sandia Code와 비교하여 온도를 얻을 수 있다.

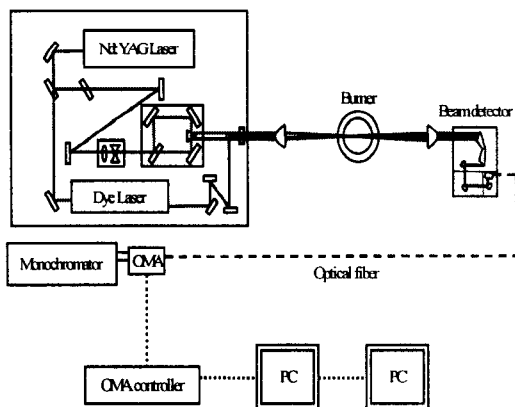


Fig. 3 Schematic of CARS System

3. 실험 조건 및 방법

3.1 실험 조건

노즐을 통해 $Q_{fuel} = 0.2$ (l/min)을 공급하였으며, 화염의 안정화 및 산화제로서 공기를 $Q_{oxidizer} = 50$ (l/min)을 공급하였다. 공기의 초기온도 $T_{inlet} = 300 \sim 900K$ 의 범위에서 100K씩 증가시켜가며 실험을 행하였으며, 이때의 단열화염온도 $T_{ad} = 2226 \sim 2499K$ 에 이른다. 각각의 온도 조건에 대한 연료 측과 산화제 측에 첨가된 질소의 영향을 알아보기 위한 선행연구로서 가연한계 실험을 행하였으며 그 결과를 T_{ad} 와 희석분율(Z)의 함수로 Fig. 4에 나타내었다. T_{ad} 는 CEC code를 이용하여 계산하였으며, Z는 질소첨가에 따른 연료 측

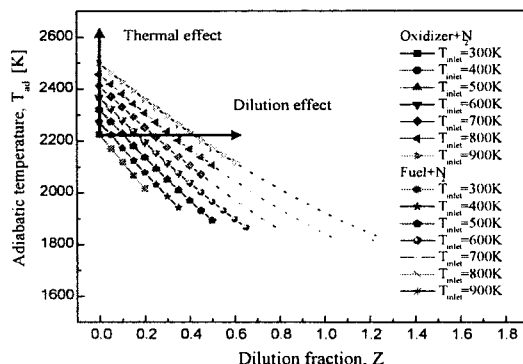


Fig. 4 Flammable Limit

과 산화제 측에 미치는 영향을 정량적으로 비교하기 위한 무차원 파라미터로 다음과 같이 정의된다[3].

$$Z = \frac{\text{mole of diluent}}{\text{mole of stoichiometric mixture}}$$

Fig. 4를 근거로 하여 T_{inlet} 즉, T_{ad} 의 변화에 대한 영향(이하 thermal effect)과 연료 측과 산화제 측의 질소첨가에 의한 Z 변화에 따른 영향(이하 dilution effect)을 알아보기 위하여 안정연소영역 범위 내에서 실험조건을 Fig. 4와 같이 선정하였으며 그 결과를 Table 1에 나타내었다.

Soot 발생에 미치는 thermal effect를 보기 위해 T_{inlet} 을 300, 600, 900K로 변화시켜 가며 질소를 첨가하지 않은 일정한 Z에 대해 실험을 행하였으며, dilution effect를 살펴보기 위해서는 T_{inlet} 을 300K, 600K, 900K로 변화시키지만 질소를 적절히 첨가시킴으로써 T_{ad} 를 일정하게 한 후 실험을 행하였다. 이렇게 함으로써 질소첨가에 따른 연료의 농도변화에 따른 영향을 독립적으로 볼 수 있을 것으로 기대된다. 화염의 특성온도로서 T_{ad} 를 채택한 것은 선행연구의 결과[1,6]에 기초한 것이다.

Table 1 Experimental conditions

Case	Q_{fuel}	$Q_{oxidizer}$	T_{inlet}	Z	T_{ad}	Diluent
1	0.2 (lpm)	50 (lpm)	300K	0	2226K	-
2				0	2368K	-
3			600K	0.163	2226K	Fuel side
4					Air side	
5			900K	0	2499K	-
6			0.412	2226K	Fuel side	
7					Air side	

3.2 실험 방법

LII의 원리는 조사된 레이저광의 에너지를 흡수한 soot 입자가 탄소입자의 증발온도인 약 4000K의 고온까지 거의 흑체에 가까운 복사체가 되고 그 이후 식는 과정을 통해 방출하는 흑체의 복사광(백열광)을 측정하는 것으로 흑체 복사의 강도가 매연입자의 농도에 비례한다는 현상을 이용하는 것이다[12-13].

LII에 사용되는 레이저는 특별한 제한이 없지만 soot 입자를 4000~5000K 온도로 상승시킬 수 있을 정도의 에너지를 발생하는 장치면 가능하다. 본 실험에서는 9.7ns 정도의 펄스 폭을 가지는 Nd:YAG 펄스 레이저의 2차 고조파인 532 nm, 10Hz, 15mJ/pulse 빔을 평면광 생성기를 사용하여 길이 4.5cm, 폭 375 μ m의 평면광으로 만든 후 화염의 중심부에 조사하였다. 필터가 장착된 ICCD 카메라를 이용하여 LII 신호를 관찰함으로써 soot의 공간분포를 획득할 수 있었다. LII 기법은 한 측정 점에서 soot 농도에 대한 정보를 순간적으로 그대로 얻을 수 있다는 장점이 있지만 LII 신호 이외의 입사광의 산란에 의한 산란광과 PAH등에 의한 형광 이외에도 C2분자에 의한 형광등과 같은 노이즈가 검출된다[14]. 이런 노이즈를 제거하기 위해서는 입사레이저의 파장과 측정파장의 범위, 측정지연시간 및 레이저 강도를 적절하게 선정[15]하여 사용해야 하는데 본 실험에서는 단색분광기에서 PMT를 통해 파장별 신호를 취득하여 순수한 LII신호가 검출되는 400 nm의 측정파장대로 선정하였고 레이저 강도는 선형영역인 15mJ에서 선택하였으며 게이트 폭은 100ns로 하여 ICCD로 100회 적산하였다.

산란광과 PAH등에 의한 형광 및 C2분자에 의한 형광등과 같은 노이즈를 제거하기 위하여 400 \pm 5nm 필터를 렌즈 앞에 장착하였으며 화염 배경효과(background)의 영향을 제거하기 위해 레이저광이 없는 상태에서 신호를 측정하여 LII 신호로부터 빼주었고, 레이저 강도에 대한 영향을

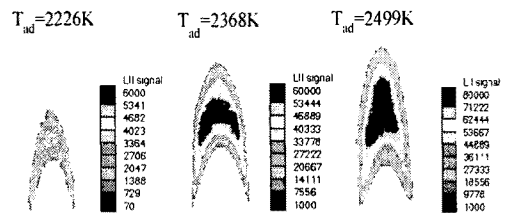
보정하기 위하여 ND필터와 반사슬릿을 사용하여 레이저빔을 ICCD로 반사시켜 레이저빔의 공간적 세기분포를 측정함으로써 이미지를 보정하였다.

4. 실험 결과 및 고찰

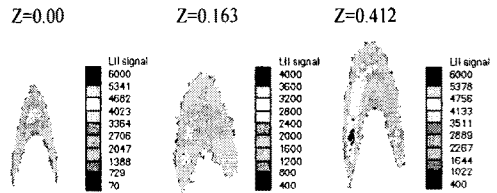
4.1 Soot 분포측정

각 실험조건에 대한 2차원 LII 이미지를 Fig. 5에 나타내었다.

Thermal effect ($Z=0.0$)



Dilution effect (Fuel+N₂, T_{ad}=2226K)



Dilution effect (Oxidizer+N₂, T_{ad}=2226K)

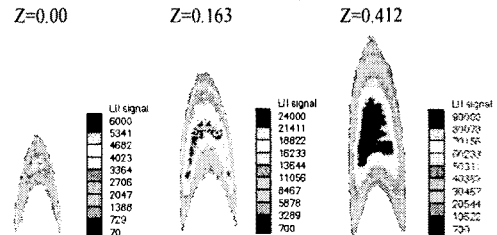


Fig. 5 2D LII images at each condition

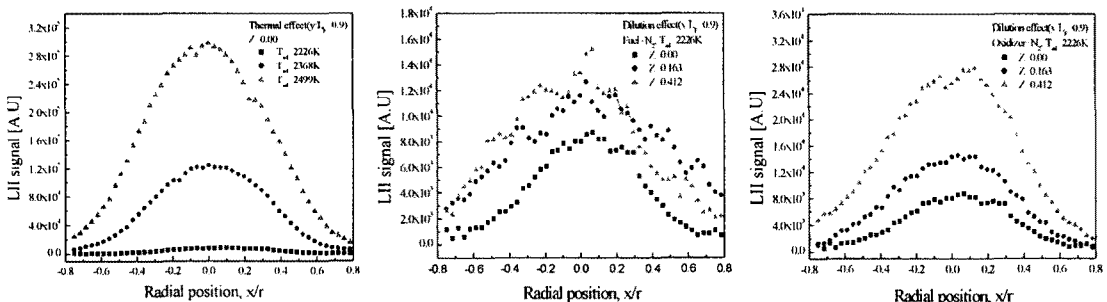


Fig. 6 LII signals at each condition ($y/L_1=0.9$)

LII 신호 세기의 비대칭성은 화염내 soot의 존재에 의한 레이저 빔의 소멸에 의한 결과로서, 빔 세기의 감쇠가 적지 않음을 보여 주고 있다. 또한 이는 레이저 빔의 세기가 선형영역에서 LII 신호를 측정했음을 뒷받침해 주는 결과라 하겠다.

이러한 질소첨가가 soot 발생에 미치는 영향을 더욱 더 확연히 보기 위하여, $y/L_f = 0.9$ 위치에서의 LII 신호를 Fig. 6에 나타내었다. 질소를 첨가하지 않은 경우, 반응물의 온도를 변화시켜 T_{ad} 를 증가시키기에 따라 soot의 발생은 급격히 증가함을 알 수 있다. 즉, Fig. 6의 왼쪽 그림은 soot 생성에 미치는 thermal effect를 정량적으로 보여주는 결과라 하겠다. 한편, 일정한 Z에 대한 soot 발생 즉, 회석효과는 산화제 측에서보다는 연료 측에서 확연히 나타남을 알 수 있다. LII 신호의 최대값을 비교해 볼 때, $Z=0.412$ 인 경우에는 산화제 회석의 경우가 연료회석의 경우에 비해 2배정도의 큰 값을 가지지만, $Z=0.163$ 인 경우에는 거의 비슷한 분포를 가지는 것을 발견할 수 있다. 이러한 결과로부터 일정한 연료농도와 속도이하에서는 회석효과가 적응을 유추할 수 있다.

4.2 반경방향 온도측정

화염온도가 soot 생성에 미치는 영향을 알아보기 위하여 일정한 높이에서의 반경방향으로의 화염온도를 측정된 결과 중 $y/L_f=0.5$ 인 경우의 온도분포를 Fig. 7에 나타내었다. 측정은 1mm 간격으로, 한 점에 대해서 100회 평균한 값을 취득하였다.

T_{inlet} 을 증가시키기에 따라 화염의 온도는 거의 선형적으로 증가함을 볼 수 있다. 이로부터 T_{ad} 와 화염온도와 상관계수를 재확인 할 수 있다. 반면에, 회석에 의한 화염온도의 변화는 연료 측과 산화제 측이 유사한 경향을 보여 주었다. 다만 연료회석의 경우 연료농도의 감소로 반응이 지연되어, 노즐직경에 해당하는 반경방향 온도는 T_{inlet} 이 낮을수록 높은 값을 나타냄을 알 수 있다.

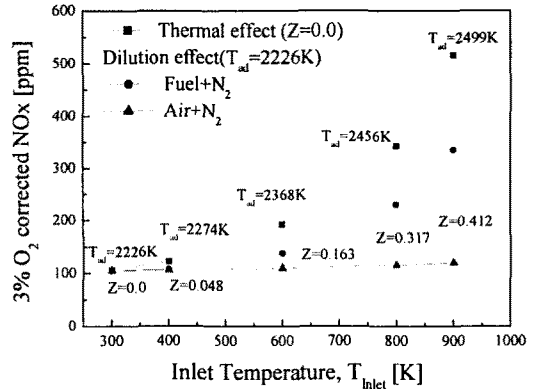


Fig. 8 NOx emissions characteristics

4.3 질소첨가에 따른 NOx 배출특성

NOx의 측정은 화염안정화를 위한 공기의 영향을 고려하여 중심 축 방향 80mm 지점에서 가스분석기(COSA6000)를 사용하여 측정하였으며 전체적인 NOx 배출특성에 대해서 온도의 영향과 회석의 영향을 보기 위해 T_{inlet} 의 함수로 Fig. 8에 나타내었다.

결과적으로 T_{inlet} 이 높을수록 많은 양의 NOx가 발생함을 알 수 있는데, 이는 화염온도 결과에서도 보듯이 Zeldovich 메카니즘에 근거한 온도 영향(thermal effect)이 NOx 발생에 지배적이라는 이론을 뒷받침하는 것이다. 그리고 T_{inlet} 의 변화시키며 질소를 첨가함으로써 T_{ad} 를 일정하게 할 경우, NOx 발생량이 줄어들음을 볼 수 있으며 이는 전체적인 화염의 온도가 질소를 첨가하지 않았을 때와 비교해서 낮아지기 때문이며 연료측에 질소를 첨가한 경우가 산화제측에 질소를 첨가한 경우보다 NOx가 많이 배출되는 것을 볼 수 있는데 이는 직접사진에서 화염의 분포영역이 산화제측에 질소를 첨가한 경우보다 연료측에 첨가한 경우 그 분포영역이 적어짐에 따라 복사열

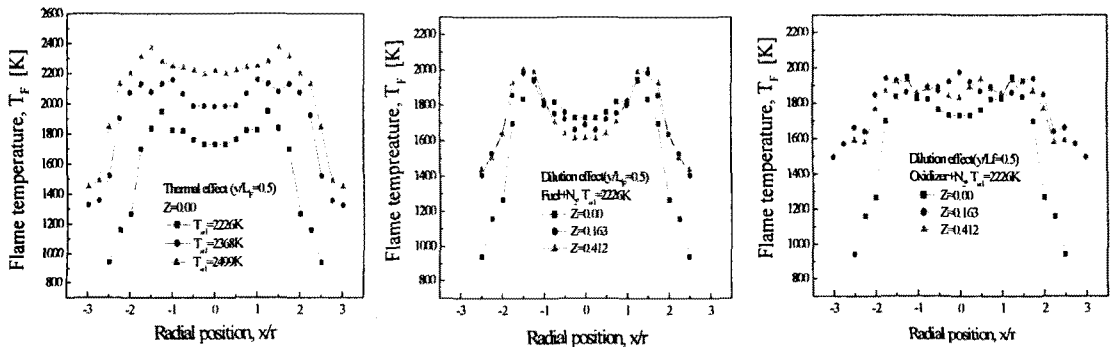


Fig. 7 Radial temperature profile measured by CARS at $y/L_f=0.5$

손실이 줄어들어서 전체적인 화염온도가 높게 나타나기 때문에 NO_x가 많이 배출되는 것으로 사료된다.

4.4 CHEMKIN Code에 의한 온도 비교

CHEMKIN Code를 이용한 $y/L_f = 0.5$ 에서의 반경방향 온도를 CARS 측정결과와 함께 아래 Fig. 9에 나타내었다. 맨 위의 그림은 thermal effect를 나타내는 것으로, $y/L_f = 0.5$ 에서 측정된 최고값이 2370K으로 T_{ad} 와의 차이에서 복사열손실양을 예측할 수 있다. 또한, 가운데 연료희석의 경우 실험결과와 같이 노즐직경에 해당하는 반경방향 온도는 T_{inlet} 이 낮을수록 높은 값을 나타내고 있으며, 전반적으로 잘 일치하는 경향을 나타내고 있다. 맨 아래그림의 산화제희석의 경우도 연료희석의 경우와 유사한 경향을 보여주고 있다.

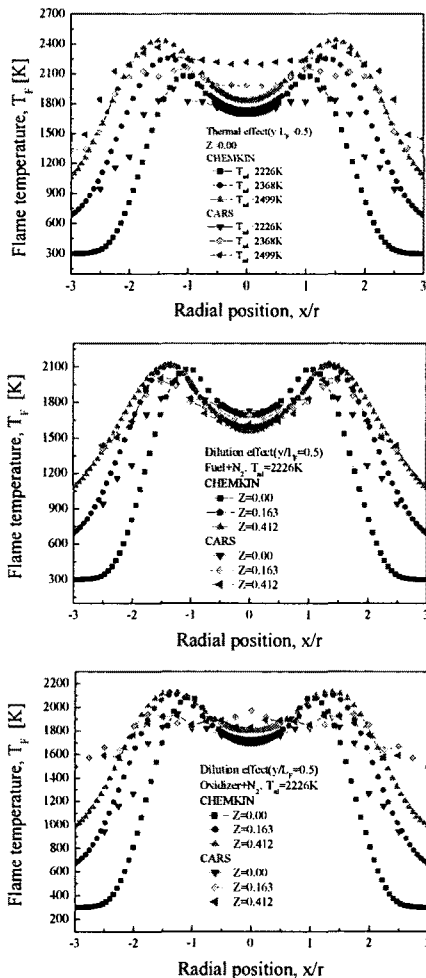


Fig. 9 Comparison of CHEMKIN data with CARS measurement data

5. 결론

메탄-공기 층류 확산화염에서 질소첨가에 따른 Z 와 T_{ad} 를 실험변수로 LII 기법을 이용한 soot의 2차원농도분포, CARS 측정 기법과 CHEMKIN Code를 이용한 온도분포 파악과 아울러 각 조건에서의 NO_x 배출특성에 대한 실험을 통하여 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

(1) LII 기법을 이용한 2차원 Soot 농도측정결과로부터 Z 와 T_{ad} 이 Soot 생성에 미치는 각각의 효과에 대해 관찰함으로써 Soot 생성, 성장, 산화 메커니즘에 미치는 희석 효과에 관한 기초 자료를 획득할 수 있었다.

(2) CARS 기법을 이용한 화염내 반경방향 온도 측정결과로부터 Z 와 T_{ad} 에 따른 온도장의 변화에 대한 통찰력을 얻을 수 있었다. 즉, 질소를 첨가하는 효과가 연료 측과 산화제 측에서 각각 달리 나타나는 것을 정량적으로 관찰할 수 있었다.

(3) CHEMKIN Code를 이용한 수치해석 결과로부터 화염내 2차원 온도분포 등을 포함하는 연소해석에 적합한 도구로서의 타당성을 검토하였다. 비록 CARS 측정결과와 정량적으로는 약간의 차이가 발생하였지만 전체적으로 잘 일치하는 경향을 보여 주었다.

(4) 가스분석기를 이용한 NO_x 배출특성 결과로부터 Z 와 T_{ad} 에 따른 NO_x 배출특성을 파악하였으며, 이들을 적절히 조절함으로써 연소온도를 저하시키지 않는 채 NO_x와 Soot의 발생을 최대한 억제할 수 있는 방법에 대한 기초자료를 획득할 수 있었다.

후기

본 연구 중에서 CARS 온도측정부분은 한국표준과학연구원 레이저 계측그룹의 도움으로 행하여 졌으며 이에 감사의 뜻을 전합니다.

참고문헌

- [1] Axelbaum, R, L., Law, C, K., 1990 "Soot Formation and Inert Addition in Diffusion Flames" 23rd Symposium on Combustion, pp1517~1523.

- [2] Ömer L. Gülder, 1995, "Effects of Oxygen on Soot Formation in Methane, Propane, and n-Butane Diffusion Flames" *Combustion and Flame* vol. 101 pp. 302-310.
- [3] J.J.Feese and S.R.Turns, 1998, "Nitric Oxide Emissions from Laminar Diffusion Flames: Effects of Air-Side versus Fuel-Side Diluent Addition", *Combustion and Flame*, Vol.113, pp.66~78.
- [4] S.R.Turns, F.H.Myhr et al, 1993, " Oxidizes of Nitrogen Emissions from Turbulent Jet Flames: PartII-Fuel Dilution and Partial Premixing Effects", *Combustion and Flame*, Vol.93, pp.255~269.
- [5] Yuan, J. and Naruse, I., 1998, "Modeling of Combustion Characteristics and NOx emission in Highly Preheated and Diluted Air Combustion", *Int. J. Energy Res.*, Vol. 22, pp.1217~1234.
- [6] Gomez, A., Glassman, I., 1986, "Quantitative Comparison of Fuel Soot Formation Rates in Laminar Diffusion Flame", 21st Symposium on Combustion pp.1087~1095.
- [7] J.D.Black, H.T.Brocklehurst, C.H. Priddin, 1996, "Non-intrusive Thermometry in Liquid Kerosene fueled Combustor Sector rings Using CARS and Comparison with CFD Temperature Predictions" *ASME 96-GT-185*.
- [8] Alan C.Eckbreth, 1998, "Laser diagnostics for combustion temperature and species"
- [9] A.C.Eckbreth, 1980. "CARS thermometry in practical combustors" *Combustion and flame*, Vol. 39 pp.133~147.
- [10] R.Bedue, P.Gastebois et al. 1984, "CARS temperature in a simulated turbo-machine combustor" *Combustion and Flame*, Vol. 57, pp. 141~153.
- [11] W.Stricker, W.Meier, 1993, "The use of CARS for temperature measurements in practical flames" *Trends in Appl. Spectroscopy* Vol. 1 pp231~260.
- [12] Dasch, C.J., 1984, "Continuous-wave probe laser investigation of laser vaporization of small soot particles in a flame," *Applied Optics* 23, pp2209~2215.
- [13] Melton, L.A., 1984, "Soot diagnostics based on laser heating," *Applied Optics* 23, pp2201~2208.
- [14] Shaddix, C.R. and Smyth, K.C., 1996, "Laser-induced incandescence measurement of soot production in steady and flickering methane, propane, and ethylene diffusion flame," *Combustion and Flame* Vol 107, pp418~452.
- [15] T.Ni, J.A.Pinson, S.Gupta, and R.J Santoro, "Two-dimensional imaging of soot volume fraction by the use of laser-induced incandescence," *Applied Optics*, Vol.34, No.30, pp.7083~7091.
- [16] I.Glassman, 1998, "Soot Laminar Diffusion Flames: Effect of Dilution, Additives, Pressure, and Microgravity," 27th Symposium on Combustion, pp1589~1596.
- [17] 이원남, 1998, "동축류 확산화염의 매연생성에 미치는 연료에 첨가된 산화제의 영향", *한국연소학회지* Vol.3 No.1 pp.11-19
- [18] 이승, 이상현, 이병준, 한재원, 2000, "레이저 유도 백열법을 이용한 화염 내부 매연 농도 측정" *대한기계학회논문집 B권*, 제24권 제5호, pp.725-732
- [19] 이교우, 정중수, 황정호, 2002, "동축 이중 에틸렌 확산화염의 매연 농도분포 및 온도측정" *대한기계학회논문집 B권*, 제26권 제3호, pp. 402-409