

H_2-SF_6 혼합 기체 연료에서 분자 차등 확산 효과

오 광 철* · 최 재 준* · 신 현 동**

Differential Molecular Diffusion Effects in H_2-SF_6 Mixture

Kwang Cheul OH*, Jae Joon CHOI* , Hyun Dong SHIN**

Key Words: differential diffusion(차등 확산), Rayleigh scattering, Jet, volume fraction

Abstract

The differential diffusion of two species in jet is considered. The direct photo images of H_2/SF_6 flame are taken and the non-react jets of H_2/SF_6 mixture are visualized with Rayleigh scattering method. The structures of Dual flame are found in the photography. As the volume fraction of H_2 in mixture is increased, the flame at side is long and as the volume fraction of SF_6 in mixture is increased, the flame at center is long. This phenomena are deduced from the non-react mixture using Rayleigh scattering method. Result show that the volume fraction in the mixture is important in differential diffusion.

1. 서 론

연소 유동장에서 제트 화염은 유동장이 단순해서 많은 연구자들의 관심의 대상이 되어 왔다. 그래서 많은 실험 데이터와 이론적 접근들이 많다. 그 중 혼합

모델은 일반적으로 하나의 보존 스칼라 변수(conserved scalar variable)가 어떤 순간, 유동장의 임의의 위치에서 유체의 조성을 완전히 설명한다고 받아들여진다. 혼합 분율(Libby and Williams,1981)은 그런 변수인데, 모든 화학종의 질량 분율이 이 변수에 선형적인 관계가 있다. 그리고 각 화학종의 확산계수가 같다는 가정(Le=1)을 도입해서 이론적인 접근을 한다. Re 수가 클때, 확산계수는 가스연료의 물성이 아니라 유동장의 함수가 되어 위의 가정이 비교적 잘 맞는

* 한국과학기술원 기계공학과

** 정회원, 한국과학기술원 기계공학과

다. 그러나 분자 확산이 무시되지 않는, 층류 유동이나 비교적 작은 Re 수에서는 이런 차등의 분자 확산을 고려해야 한다. 이런 생각들로부터 난류에서의 차등 확산의 효과를 보기 위한 계산이 많이 수행되었는데, Bilger 등은 차등 확산의 정도를 이론적인 접근과 수치 계산을 통해 Rayleigh 산란 기법을 통한 실험 결과에 예측해냈다. 그리고 이런 차등 확산은 비교적 큰 Re 수에서도 나타난다는 보고를 하고 있다.[1] 그리고 이병무 등은 H_2/N_2 확산화염에서 perturbation 이론을 가지고 전형적인 보존 스칼라 방법을 이용한 접근에서 Drake의 실험 결과[2,3]와 같이 연료 과농 지역에서 차등 확산 현상이 제일 큼을 밝혔다.[4] Smith 등도 Raman scattering을 이용해서 난류화염에서의 차등 확산이 화염의 연료 과농 지역에서 최고치를 나타냈다.[5] 최성진 등은 He- CO_2 의 혼합 가스에서의 차등 확산을 Rayleigh 산란으로 가시화 하였다 층류일 때뿐만 아니라 비교적 큰 Re 수에서도 차등 확산이 효과가 비반응 유동장에서 나타남을 보였다.[6] 그리고 차등 확산은 확산-열의 불안정성에 의한 셀 구조의 화염을 형성한다. 이런 차등 확산에 의한 셀 구조의 화염 연구에서는 여러 가지 가스를 혼합하여 셀 구조의 유무와 셀의 크기등을 측정하였다.[7,8] 그리고 유영환 등은 볼텍스에서의 주름진 모양을 직접 사진과 밀도 구배에 의한 shadow의 모습을 보여 차등 확산에 의한 구조의 모습을 볼텍스에서도 볼 수 있었다. [9]

본 연구에서는 이런 차등 확산이 화염의 모양에 어떤 영향을 주고, 화염의 모양의 변화의 원인을 찾고자 한다.

2. 실험 장치 및 방법

2.1. 실험 장치

실험에 사용한 버너는 그림 2와 같다. 가운데 내경 2.5mm 노즐에서 혼합 가스 연료(H_2-SF_6)가 분출되고, 주위에 내경 11mm인 노즐에서는 공기를 흘려준다. 이는 수소의 확산이 커서 노즐 아래쪽에

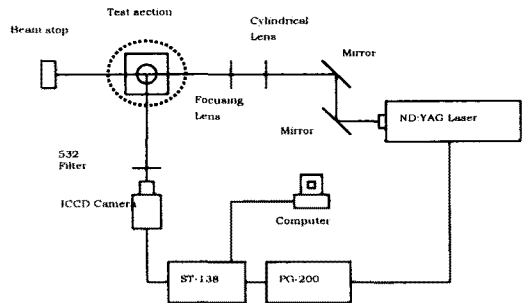


그림 1 Rayleigh 산란을 위한 실험장치

화염이 형성되어 노즐이 빨갛게 달구어지는 것을 방지하기 위함이다. 그리고 제일 외각의 5:1의 수축 노즐은 Rayleigh 산란 실험시 주위의 먼지의 유

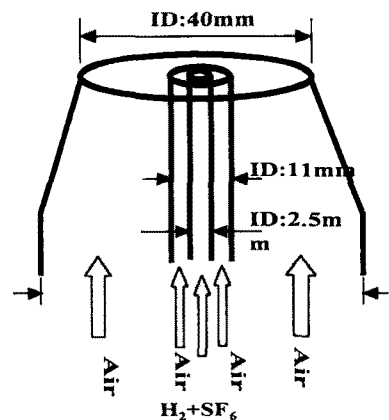


그림 2 시험부

입을 막는다. 각 가스의 유량은 버블미터로 검정된 오리피스로 조절되었고, H_2

와 SF₆의 확실한 혼합을 위해 mixing chamber를 두었다.

그림 1은 Rayleigh 산란을 이용하여 비반응 유동장의 가시화를 위한 실험 장치이다. 레이저는 Pulsed ND-YAG 레이저(532nm)를 사용하였다. 레이저에서 나온 빛은 실린더리퀴 렌즈와 볼록렌즈를 이용하여 시험부에 15mm의 sheet를 형성하였다. 수광부는 중심파장이 532nm, band width가 10nm인 간섭필터와 레이저와 동기된 ICCD를 이용하여 평면의 신호를 받았다.

2.2. Rayleigh 산란

Rayleigh 산란은 탄성산란이기 때문에 입사한 레이저의 파장과 산란된 레이저의 파장이 같다. 이 조건이 모든 기체에 대하여 동일하므로 기체의 종류를 구별할 수 없다. 이 때문에 Rayleigh scattering 방법은 여러 기체를 사용하지 못하므로 제한되어왔고, 연소장에서 생성물(product)이 생기게 되면 이것을 구별하지 못하므로 단점으로 여겨진다.

Rayleigh 산란 신호는 사용하는 레이저의 강도(intensity)에 비례하고 파장의 4제곱의 역수에 비례한다[10]. 즉,

$$\text{Rayleigh 산란신호} \propto \frac{I_0}{\lambda^4} \quad (2.1)$$

(I_0 : 레이저 강도, λ : 레이저 빛의 파장)

이다.

Rayleigh 산란에서 산란의 크기를 가장 많이 좌우하는 것이 산란 단면적(Rayleigh cross section)이다. 산란 단면적이란 레이저의 파장이 지나가면서 기체의 분자와 부딪칠 확률로서, 실험에서는 레이저의 파장이 고정되어 있으므로 기체 분자의 굴절률(index of refraction)

에 좌우된다.

Rayleigh 산란 단면적(σ_{ri})은 다음과 같은 식으로 표현될 수 있다[9].

$$\sigma_{ri} = \frac{4\pi^2(n_i - 1)^2}{\lambda^4 N_0^2} \sin^2 \theta \frac{3}{3 - 4\alpha} \quad (2.2)$$

여기에서 n_i 는 표준상태(STP, standard temperature and pressure)에서 기체의 굴절률(index of refraction), λ 는 레이저의 파장, N_0 는 표준상태에서 이상기체의 수밀도(molecular number density,), θ 는 산란각이고, α 는 depolarization ratio이다. 보통 기체는 등방성이라고 생각하기 때문에 $\alpha = 0$ 이고, 산란각은 측정자가 정할 수 있고, 가장 큰 것이 좋기 때문에 주로 $\theta = 90^\circ$ 로 정하며 이때 $\sin \theta = 1$ 이므로, 산란 단면적은 레이저 파장의 4제곱에 반비례하는 다음 식으로 나타내어진다.

$$\sigma_{ri} = \frac{4\pi^2(n_i - 1)^2}{\lambda^4 N_0^2} \quad (2.3)$$

이 식에서 각 기체의 고유한 성질은 n_i (index of refraction) 밖에 없다. n_i 는 거의 '1'에 가까운 숫자이지만, 기체의

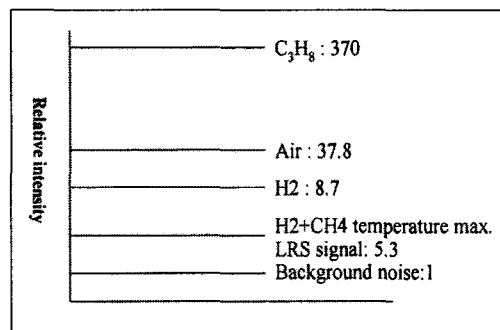


그림 3 상대적인 Rayleigh 산란 신호

분자의 크기가 크면 클수록 커지므로 대부분의 경우 기체의 분자가 크면 Rayleigh 산란 단면적은 커지게 된다.

Rayleigh scattering intensity는 다음과 같이 표현된다.

$$I_r = CI_0N \sum x_i \sigma_{ri} \quad (2.4)$$

여기에서 C 는 상수, I_0 는 레이저 빛의 강도, N 은 기체의 수밀도, x_i 는 기체의 물분율이다. 이 식에서 볼 수 있듯이, Rayleigh 신호 강도는 레이저 빛의 강도, 물분율과 Rayleigh 산란 단면적의 조합으로 이루어지는데, 산란 단면적이 기체의 분자의 크기와 레이저의 파장과 관계가 있으므로 이것의 조합이 Rayleigh 신호를 결정하는 것이다. 또한 Rayleigh 산란 단면적의 크기가 크면 주위 간섭(background noise)의 크기가 상대적으로 작아져서 Rayleigh 신호 강도

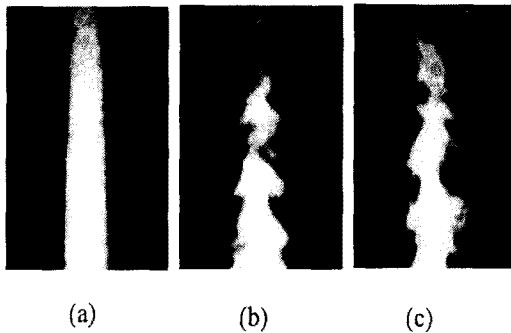


그림 4 프로판 제트의 Re수에 따른 농도 분포((a) 2100, (b) 4500, (c)5600)

의 신호대 잡음비(S/N ratio)가 커진다는 것을 알 수 있다.

Rayleigh 산란의 상대적 세기의 예를 보면 그림 3과 같다. background noise를 1로 봤을 때 수소는 그 보다 8.7배정도 크고, 수소보다 분자의 크기가 큰 공기는 37.8배가 커서 이론적인 산란광의

세기와 거의 일치됨을 알 수 있다. 그리고 비반응 제트 유동장의 가시화의 예는 그림 4와 같다. 중심 축으로 갈수록 프로판의 농도가 커서 큰 세기를 보여주고, 공기와 접하는 곳은 공기와의 혼합으로 산란 광의 세기가 감소함을 보이고 있다. 그리고 Re 수에 따른 제트의 모습도 잘 보여주고 있음을 알 수 있다.

3. 결과 및 고찰

3.1. H₂-SF₆ 화염

그림 5는 수소의 유량을 고정하고 SF₆의 유량을 증가시키면서 화염의 모양을 직접사진으로 촬영한 것이다. 그림 (a)는 SF₆의 유량이 전체유량에 17%정도이고, 노즐 출구 속도는 4.4m/sec이다. 화염의 형상을 보면 화염의 끝이 붉은 화염으로 달혀있는 형태이고, 그 안에 조금 파란색이 보인다. 이 조건에서 SF₆의 유량을 증가시키면 그림 5의 (b) - (f)로 화염이 변화한다. (b) - (f)의 화염 형상은 (a) 사진에서 붉은 화염 안에 있던 조금 파란색의 화염이 점점 붉은 화염을 뚫고 나온다. 여기서 붉은 화염은 수소 화염이 공기 중에 있는 수분을 연소시킴으로 발생하는 것으로 사료된다. SF₆는 일반적으로 inert 가스로 알려져 있지만 고온에서의 분해에 의해 수소 화염을 보라 빛이 되게 한다.[9] 그림 5의 사진에서 SF₆를 증가시키면 가운데의 SF₆가 많이 포함된 수소 화염이 가장자리에 있는 수소-공기화염을 뚫고 나옴을 알 수 있다.

그림 6은 SF₆의 유량을 고정하고 수소의 유량을 증가시키면서 찍은 사진이다. 그림 5의 마지막 사진에서 수소의 유량을 늘리면 가장자리의 붉은 화염이 가운

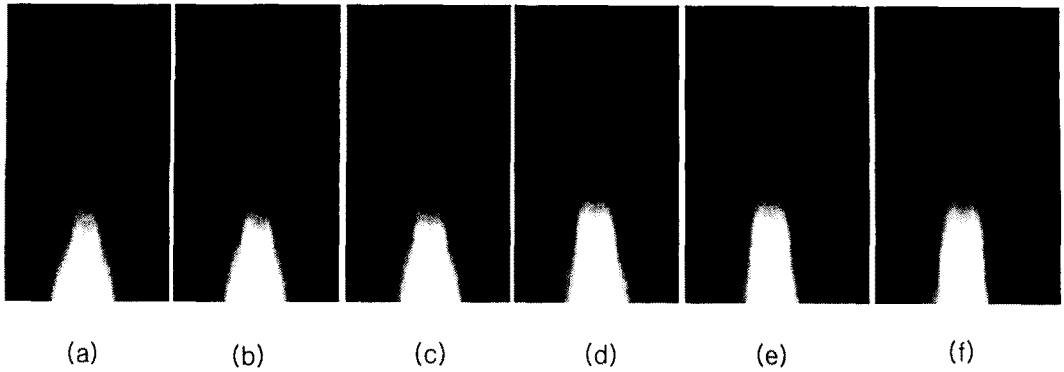


그림 5 수소의 유량을 동일하게 유지하고 SF₆의 유량을 증가함에 따른 H₂-SF₆ 혼합 연료의 화염형상 (실험 조건은 표 1)

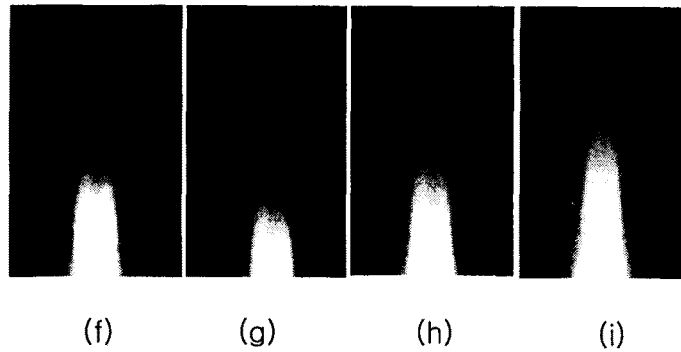


그림 6 SF₆ 유량을 고정하고 수소의 유량을 증가시킬 때의 화염 형상(실험 조건은 표1)

표 1 그림 5 와 6의 H₂-SF₆ 유량 조건

구분	(a)	(b)	(c)	(d)	(e)	(f)	(g)	(h)	(i)
H ₂ (l/min)	1.07	1.07	1.07	1.07	1.07	1.07	1.36	1.61	2.03
SF ₆ (l/min)	0.23	0.28	0.33	0.43	0.50	0.58	0.66	0.66	0.66
SF ₆ 의 부피 분율(%)	17.7	20.7	23.6	28.7	31.8	35.2	32.7	29.1	24.5
노즐 출구 속도(m/sec)	4.4	4.6	4.8	5.1	5.3	5.6	6.9	7.7	9.1
주위류속도 (m/sec)	1.92								

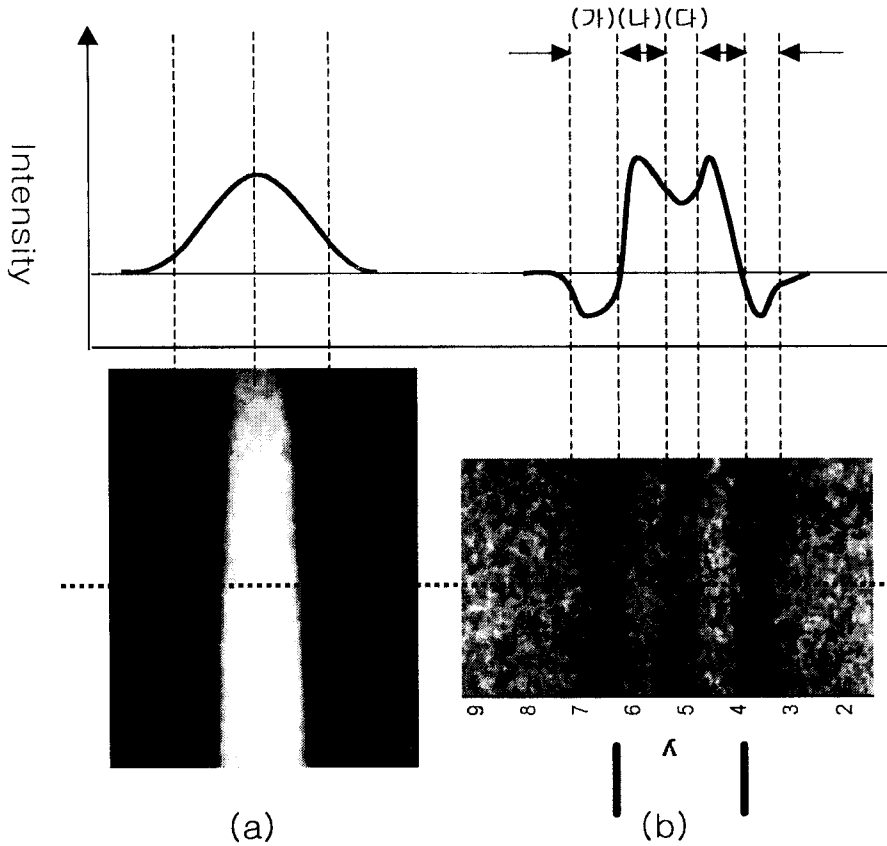


그림 7 단일 기체에서의 Rayleigh 산란광의 분포와 H₂-SF₆ 혼합기체의 산란광 세기 분포((a) C₃H₈ (b) H₂-SF₆ , 주위는 공기)

데 푸른 화염을 점점 감싼다. 사진 (f)를 보면 그림 5의 (a)사진과 모양이 거의 일치한다. 이런 현상은 유량에 관계없이 H₂와 SF₆의 혼합 비율에 의해 결정된다.

그림 5와 6에서 알 수 있듯이 화염면이 두 개인 듯한 모양이 관찰되는데 이런 현상의 원인에 대해서 비반응 유동장을 Rayleigh 산란을 이용하여 관찰해 보았다. Rayleigh 산란은 앞에서도 언급했지만 가스의 종류는 구별할 수 없다. 따라서 반응이 일어나 화학종이 변화하면 그 결과를 해석하기가 어렵다. 그러나 비반

응 유동장에서는 각 가스의 산란 단면적이 서로 달라서 전체 신호의 크기로 혼합 비율을 정성적으로 알 수 있다.

3.2. H₂-SF₆ 혼합 가스(비반응 유동장)

그림 7은 비반응 유동장의 전형적인 Rayleigh 신호의 세기분포이다. (a)의 경우는 프로판 제트로서 프로판은 공기보다 산란 단면적이 10정도 크다. 따라서 (a)에서의 분포는 프로판이 공기측으로 확산해 가면서 공기와의 혼합에 의해 신호의 세기가 감소하여

위의 개략도에서 볼 수 있듯이 중간에 첨두치가 없는 분포가 되어진다. 그러나 (b)의 경우는 H₂와 SF₆의 확산정도가 달라서 중간에 첨두치가 있는 분포의 개략도를 보인다. (b)의 그림은 (가), (나), (다) 세 부분으로 나누어 볼 수 있는데, 각 부분을 살펴보면 다음과 같다.

(가) 영역 : H₂-SF₆의 혼합기체 중에 공기에 대한 확산계수가 큰 수소의 확산에 의해서 생긴 부분이다. 여기서는 수소와 공기가 대부분을 차지하는 영역으로 Rayleigh 신호가 작게되는 영역이다.

(나) 영역 : SF₆의 확산이 일어나고 H₂가 빨리 공기중으로 확산하고 공기가 확산되어 들어오는 영역이다. 여기서는 SF₆는 변화가 거의 없는 반면에 수소가 빠르게 공기 중으로 확산하고 공기의 확산이 일어나 Rayleigh 산란단면적이 증가가 일어난다. 따라서 이 영역은 수소보다 SF₆의 비율이 초기의 혼합 비율보다 높은 영역으로 볼 수 있다.

(다) 영역 : 제트의 속도가 빠르고 측정위치가 노즐에서 14mm 정도이므로 초기의 혼합가스의 조성 그대로의 신호를 보여주는 곳이다.

각 가스에 대한 binary 확산계수는 표 2와 같다

표 2 Binary diffusion coefficient

구분 (cm ² /sec)	H ₂	SF ₆	air
H ₂	1.115	0.405	0.72
SF ₆		0.037	0.086
air			

공기와 수소간의 확산 계수는 공기와 SF₆ 와의 확산계수보다 7배가 크다. 따라서 같은 위치에서의 확산거리(= $\sqrt{2D\Delta t}$)는 2.6배 정도의 차이가 난다.

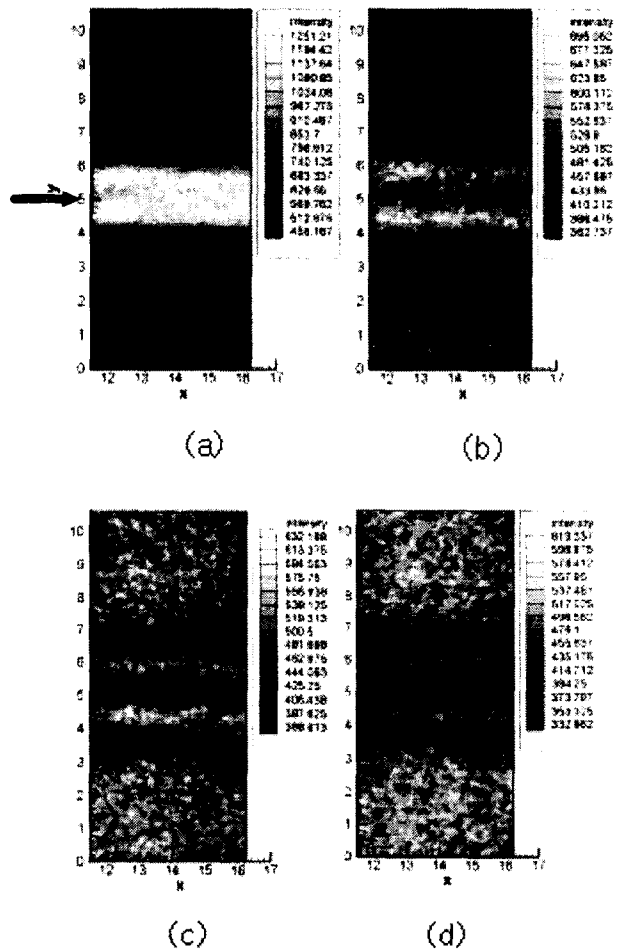


그림 8 SF₆를 고정하고 H₂의 유량을 증가시키면서 측정

(실험에 사용된 유량과 조건은 표 3과 같다.
화살표 : 분출 방향)

그림 8은 SF₆를 고정하고 수소의 유량을 증가시키기에 따른 Rayleigh 산란 신호의 세기이다. (a)를 보면 노즐 가장자리에 SF₆의 비율이 큰 부분의 신호를 볼

표 3 그림 8 실험 조건

구분	(a)	(b)	(c)	(d)
H ₂ (l/min)	1.04	2.4	3.1	3.8
SF ₆ (l/min)	0.34	0.34	0.34	0.34
SF ₆ 의 부피 분율(%)	24.6	12.4	9.9	8.2
노즐 출구 속도(m/sec)	4.7	9.3	11.6	3.8
주위류 속도(m/sec)	3.8			

수 있다. 수소의 유량을 증가함에 따라 제일 외각 부분에 신호의 세기가 약한 부분이 더욱 선명해 짐을 알 수 있다. 이는 빠른 확산 계수를 갖는 수소에 의한 확산이라고 볼 수 있다. 이런 부분이 화염의 외각부분의 붉은 화염을 형성시킨다고 사료되어 진다. 이런 분리는 노즐에서 나오면서 발생하기 시작하고 확산 계수의 차이가 클수록 명확히 발생한다.

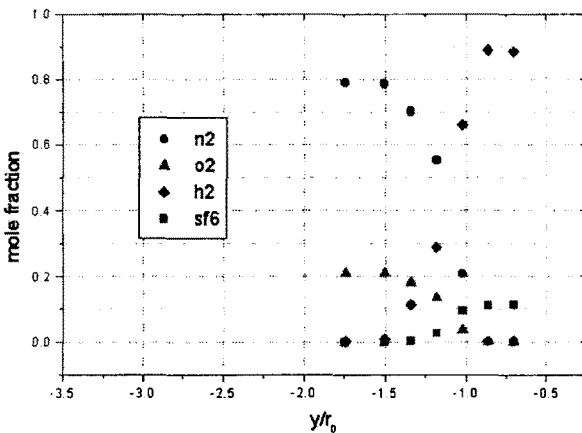


그림 9 노즐 출구에서 농도 분포
(H₂ : SF₆ = 0.88 : 0.12의 부피 분율, 그림 9의
(b)의 경우, r₀ : 노즐 반경)

다. 그림 9은 노즐 출구에서 GC(Gas Chromatography)를 이용하여 농도를 측정하는 것이다. Rayleigh 산란은 탄성산란이고 신호가 작아서 노즐과 가까운 부근에서는 얻지 못했다. 그림 9에서 보면 노즐 출구에서조차 수소의 확산이 빠르게 일어남을 볼 수 있고, 노즐에서 처음의 혼합비대로 잘 섞여 있음을 알 수 있다.

3.3 화염과 비반응 유동장의 관계

3.1절에서 화염의 형상을 직접사진을 이용하여 관찰하였다. H₂와 SF₆의 부피 분율에 따라 화염의 큰 변화를 보였다. 이는 비반응 유동장에서 볼 수 있듯이 서로 차이가 큰 확산 계수에 의한 혼합기체의 분리가 이루어짐으로 발생된다고 여겨진다. 비반응 유동장으로 화염을 그대로 유추하기 어렵지만, 비반응 유동장에서 변화 방향과 화염에서의 변화 방향이 거의 유사함을 알 수 있다. H₂의 증가에 의한 변화가 화염에서의 가장자리의 화염을 변화시키고, SF₆의 증가는 노즐 폭내에서의 화염을 바꾼다. 이는 1:1의 직접적 관계는 아니지만 화염의 겉보기의 변화를 비반응 유동장으로 유추하기에 충분하다고 생각된다.

4. 결론

화염에서 분자 차등 확산 현상의 효과와 원인을 알아보았다. 분자 차등 확산의 효과를 알기 위해 수소와 분자량이 146이고 inert 가스로 알려진 SF₆를 사용하였다. 두 가스의 확산 정도에 차이에 의해 화염의 겉보기 형상이 바뀐다. 이는 이전의 셀 구조의 하나의 화염과 비슷하

다. 이런 화염의 구조는 비반응 유동장의 관찰로 그 원인을 유추할 수 있었다. 비반응 유동장은 Rayleigh 산란을 이용하여 측정하였는데 화염의 직접상의 변화 방향과 같은 방향으로 변함을 알 수 있었다. 따라서 화염의 변화는 두 가스의 확산 계수의 차이에 의한 비반응 유동장의 변화에 의해 영향을 받는다.

참고문헌

- (1) R.W.BILGER and R.W.DIBBLE, , Differential Molecular Diffusion Effects in Turbulent Mixing , Combustion Science and Technology vol. 28, 161-172(1982)
- (2) Drake,M.C., Lapp,M., Penney,C.M. and Warshaw,S. , Measurements emperature and concentration fluctuations in turbulent diffusion flames using pulsed Raman spectroscopy, 18Th symposium on combustion, The Combustion Institute 1521 (1981)
- (3) Drake,M.C. , Bilger, R.W. and Starner, S.H. Raman Measurements and conserved scalar Modelling in turbulent diffusion flames, 19th symposium on combustion, The Combustion Institute 4591 (1982)
- (4) Byung Moo Lee and Hyun Dong Shin , Differential diffusion effects in H_2/N_2 turbulent nonpremixed flames, Combustion Science and Technology Vol 62, 311-330 (1988)
- (5) L.L. SMITH, R.W. DIBBLE, L. TALBOT R.S. BARLOW and C.D. CARTER , Laser Raman scattering Measurements of Differential Molecular Diffusion in Turbulent Nonpremixed Jet Flames of H_2/CO_2 fuel , Combustion and flame 100: 153-160(1995)
- (6) Su-Jin Choi, Yasushi Douura, Masaharu Komiyama, Toshimi Takagi, Young-June Chang , Visualization of differential diffusion effects in Laminar and Turbulent jets , KSME-JSME (1996)
- (7) Ruey-Hung Chen, G.Bradley Mitchell ,and Paul D. Ronney, Diffusive-thermal instability and flame extinction in nonpremixed combustion , 24th symposium on combustion, The Combustion Institute 2131 (1992)
- (8) Martin Hertzberg , Selective Diffusional Demixing: Occurrence and size of cellular flames , Prog. Energy Combust. Sci Vol.5, 203-239 (1989)
- (9) 유영환, 볼텍스와 비예혼합화염 상호작용에 관한 가시화 연구 , KAIST 박사학위 논문 (1999)
- (10) Fu-Quan Zhao & Hiroyuki Hiroyasu, The Applications of Laser Rayleigh Scattering to Combustion Diagnostics ,Prog. Energy Combust. Sci., Vol. 19, (1993)
- (11) Toshimi Takagi, Yuzuru Yoshikawa, Kenji Yoshida, Masaharu Komiyama and Shinichi Kinoshita, Studies of strained non-premixed flames affected by

flame curvature and preferential diffusion, 26Th symposium on combustion, The Combustion Institute 1103 (1996)

- (12) R.W. Bilger, Molecular transport effects in turbulent diffusion flames at moderate Reynolds number, AIAA Vol. 20, No.7, 926 (1982)