

부분예혼합 대향류 화염에서의 NO 생성특성

- 수치해석 및 PLIF 결과 비교

이웅재* · 이원남** · 차민석*** · 송영훈***

NO Formation in Partially Premixed Counterflow Flames

- Comparison of Computed and PLIF Results

Woongjae Lee, Wonnam Lee, Min Suk Cha and Young-Hoon Song

Key Words: NO_x(질소산화물), LIF(레이저유도형광), Premixedness(예혼합정도)

Abstract

OH radical and NO distributions have been measured in methane/air partially premixed counterflow flames ($\alpha=1.0, 0.8, 0.6$) using PLIF technique. The results are discussed and compared with the numerical analysis results obtained under the same flame conditions. Measured OH and NO LIF signals agree with the computed concentration distributions. Both numerical and experimental results indicate that the structural change in a flame alters the NO formation characteristics of a partially premixed counterflow flame. The nitrogen dilution also changes flame structure, temperature and OH radical distributions and results in the decreased NO concentrations in a flame. The levels of decrease in NO concentrations, however, depends on the premixedness (α) of a flame. The larger change in the flame structure and NO concentrations have been observed in a premixed flame ($\alpha=1.0$), which implies that the premixedness is likely to be a factor in the dilution effect on NO formation of a flame.

기호설명

c_{pi} : i -화학종의 정압비열, cal/mol · K
 h_i : i -화학종의 엔탈피, cal/mol
N : 화학종의 수
R : 일반 기체상수, 8.314kJ/(K · mol)

T : 온도, K
 ρ : 밀도, g/cm³
 W_i : i -화학종의 분자량, g/mol
 ω_i : i -화학종의 반응율, mol/(cm³ · s)
 Y_i : i -화학종의 질량분율

1. 서론

대기오염 감소를 위한 노력의 일환으로 연소장치에서 배출되는 NO_x의 저감 기술에 대한 연구가 널리 수행되어 왔으

* 단국대학교 기계공학과

** 단국대학교 대학원

*** 한국기계연구원

며, 또한 이를 위한 기초지식의 획득을 위하여 화염을 이용한 NO 생성 메카니즘에 관한 연구가 활발하게 진행되고 있다. 최근에는 연소기술의 발달로 가스버너와 가솔린 직접분사(GDI) 엔진과 같은 부분예혼합 연소를 이용하는 연소장치가 증가하고 있으며, 부분예혼합 연소과정에서의 NO 생성 특성에 대한 이해가 요구되고 있다.

메탄은 가장 간단한 파라핀 계열의 탄화수소 연료로서 NO 생성 반응을 포함한 연소 반응 메카니즘이 비교적 많이 알려져 있다.⁽¹⁻³⁾ 메탄은 구조적 특성상 연소과정에서 발생하는 CO, HC 및 매연입자 등 대기오염 물질의 배출이 다른 연료에 비하여 비교적 적지만, NO_x의 발생은 거의 유사하다고 알려져 있다. 메탄화염에서의 NO 생성 특성은 thermal (Zeldovich), prompt (Fenimore), N₂O intermediate 및 reburn 메카니즘에 의해 결정되며, 화염 조건에 따라 각각의 기여도가 달라지게 된다.⁽⁴⁾ 일반적으로 thermal NO는 고온 지역에서 NO 생성 특성을 결정하며 온도에 높은 의존성을 갖게 된다. 반면에 prompt NO는 연료과농의 저온 지역에서, N₂O 메카니즘은 저온의 희박연소 조건에서, reburn 반응은 CH, 라디칼들이 많이 존재하는 확산화염 또는 과농 예혼합 화염의 NO 생성특성에 영향을 미친다. 따라서 연소과정의 공기/연료 혼합비에 따른 각각의 NO 생성 메카니즘의 역할에 대한 이해가 필요하다. 최근의 GRI-Mech 2.11 반응 메카니즘⁽⁵⁾을 이용한 수치해석적 연구^(2,6)는 연소조건에 따라 thermal, prompt 및 reburn 메카니즘의 역할을 보여주었으며, 동축류 부분예혼합 화염을 이용한 LIF 실험 결과는⁽⁷⁾ 회석에 의한 NO 생성 특성 변화의 이해를 돕고 있다. 그러나 수

치해석적으로 분석된 NO 생성 특성과 실험적으로 얻어진 결과를 직접적으로 비교한 예는 많지 않으며, 특히 부분예혼합 화염에서 EGR 또는 질소 회석이 NO 생성 메카니즘에 미치는 영향에 대한 체계적인 연구가 이루어지지 않고 있다. 따라서 본 연구에서는 대향류 메탄/공기 부분예혼합 화염에서 과농 예혼합 화염과 희박 예혼합 화염을 동시에 형성하고 질소 10%를 첨가하며, OH 라디칼과 NO 분포를 PLIF를 이용하여 측정하였다. 얻어진 실험 결과는 수치해석 결과와 직접적으로 비교되었으며, 예혼합 정도와 회석에 따른 NO 생성 특성의 변화를 알아보았다.

2. 지배 방정식 및 수치해석

대향류 예혼합 화염에서는 Fig. 1과 같이 과농의 연료/산화제와 희박의 연료/산화제가 서로 반대로 마주하며, 정체점을 중심으로 양쪽에 화염이 생성된다. 이 화염의 수치해석적 모사에는 대향류 유동장의 지배방정식⁽⁸⁾들이 사용되었으며, 연속 방정식, 운동량 방정식, 화학종 방정식, 에너지 방정식과 상태방정식은 각각 다음과 같다.

$$\frac{dU}{dz} + 2af' = 0 \quad (1)$$

$$\frac{d}{dz} \left(\mu \frac{df'}{dz} \right) - U \frac{df'}{dz} + a[\rho_{\infty} - \rho(f')]^2 = 0 \quad (2)$$

$$\frac{d}{dz} (\rho Y_i U_{iz}) + U \frac{dY_i}{dz} - w_i W_i = 0 \quad (3)$$

$$\frac{d}{dz} \left(\lambda \frac{dT}{dz} \right) - \bar{c}_p U \frac{dT}{dz} - \sum_{i=1}^n \rho Y_i U_{iz} c_{pi} \frac{dT}{dz} - \sum_{i=1}^n w_i W_i h_i = 0 \quad (4)$$

대향류 버너를 구성하며, Fig. 3은 완성된 대향류 버너를 보여준다. 이때 6 개의 MFC(mass flow controller)를 이용하여 노즐을 흐르는 연료/공기 혼합기 및 회석을 위한 질소의 유량을 조절하였다. Fluent를 이용한 수치해석 결과로부터 유동장 특성이 대향류 화염연구에 적합하다는 것을 알 수 있었으며, 사용된 버너에 대한 상세한 설계 사양과 이에 대한 설명은 참고자료⁽⁹⁾에 있다.

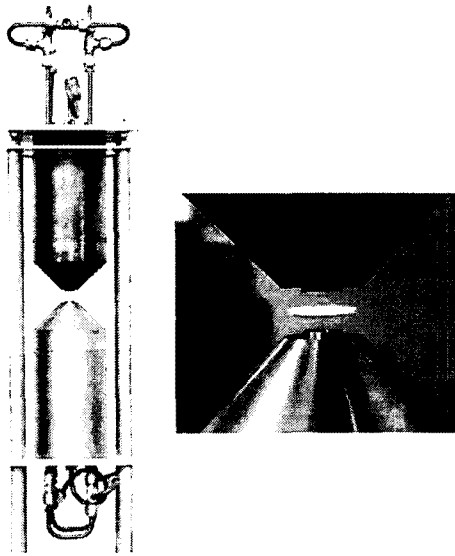


Fig. 3 Counterflow burner assembly.

3.2 PLIF 장치 및 실험절차

OH 라디칼 및 NO 측정에 사용된 PLIF 장치는 참고문헌⁽⁷⁾과 동일하다. 레이저 광원으로는 Nd:YAG 레이저(GCR-250-10, Spectra Physics)와 OPO(Optical Parametric Oscillator; MOPO 730D10, Spectra Physics)가 사용되었다. PLIF 이미지들은 105mm UV 렌즈가 장착된 ICCD (Princeton Instrument) 카메라를 이용하여 얻어졌으며, OH 측정에는 WG305+UG11 광학 필터가 NO 측정에는

430 nm band pass 필터(FHFW 10 nm)가 각각 사용되었다. 이때 실린더렌즈 ($f = 100$ mm) 와 구형렌즈 ($f = 250$ mm)를 사용하여 평면광을 형성하고, 카메라의 게이팅 시간은 150ns로 설정하였다.

OH 라디칼의 LIF 신호의 측정에는 $A_2S^+-X_2Pi$ (1, 0) 밴드 $Q_1(6)$ 라인(282.96 nm)이 여기파장으로 사용되었으며, NO의 LIF 신호 측정에는 $P_{21} + Q_1(14)/R_{12} + Q_2(21) + P_1(23)$ 라인(226 nm)이 여기파장으로 선택되었다. OH 라디칼의 LIF 신호는 매우 강하므로 광학 필터와 게이팅 시간의 조절로 만족할 만한 이미지를 얻을 수 있었다. 그러나 NO의 LIF 신호는 측정시 화염의 자발광 신호와 함께 나타나며 광학 필터와 게이팅 시간의 단축으로는 자발광 신호의 제거가 불가능하였다. 따라서 NO의 LIF 이미지에서 레이저 주사 없이 측정된 화염의 자발광 신호를 제거하는 영상처리를 거쳐서 NO의 LIF 이미지를 얻을 수 있었다.

3.3 실험 조건

시뮬레이션 결과와 비교하기 위하여 동일한 조건에서 실험을 수행하였다. 메탄/공기 혼합기를 사용하였으며, 예혼합 정도(α)를 1.0, 0.6, 0.8로 변화시켰다. 노즐 간격은 1.0 cm 이며, 노즐 출구 속도는 양쪽 노즐 모두 80 cm/s로 일정하게 유지하였다. 회석하는 경우에는 질소를 체적비 10% 첨가하였으며, 이 경우에도 모든 노즐의 출구 속도는 80 cm/s로 조절하였다.

4. 결과 및 고찰

본 연구는 예혼합 화염과 과농/희박 예혼합 화염을 대상으로 하였다. 예혼합 정도(α)를 변화시키기 위하여 한 출구에서

의 메탄과 공기의 당량비를 α 로 할 때, 다른 한쪽의 당량비를 $1/\alpha$ 로 조절하였으며, 예혼합 화염($\alpha=1$)과 과농/희박 예혼합 화염($\alpha=0.6, 0.8$)에서의 화염구조, OH 라디칼의 분포 및 NO 농도 분포를 시뮬레이션 결과와 PLIF 이미지를 비교하였다.

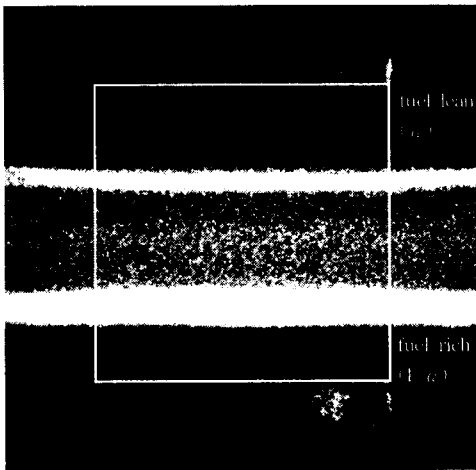


Fig. 4 Flame luminosity of a CH₄/Air partially premixed flame ($\alpha=0.8$).

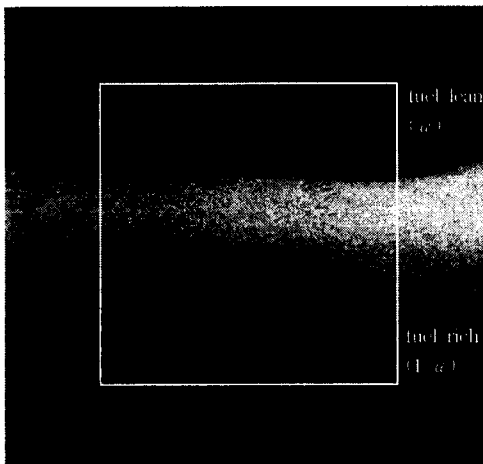


Fig. 5 OH LIF image of a CH₄/Air partially premixed flame ($\alpha=0.8$).

4.1 화염 구조의 변화

Fig. 4와 Fig. 5는 각각 430 nm band pass 필터(FHFW 10 nm)를 통과하여 얻어진 화염과 OH 라디칼의 LIF 이미지 예를 보여주고 있다. 이 경우 $\alpha=0.8$ 인 조건에서 삼중 화염의 구조를 갖고 있음을 알 수 있다.

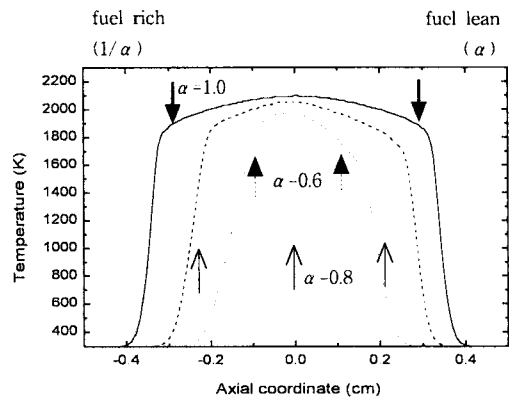


Fig. 6 Flame positions for various α , calculated (lines) and measured (arrows).

Fig. 6는 이와 같이 얻어진 화염의 자발광 이미지에 나타난 화염면 위치와 시뮬레이션으로 얻어진 화염의 구조를 비교하고 있으며, 연료/공기 혼합비가 희석되지 않은 조건에서 α 값이 0.6, 0.8 및 1.0인 화염을 비교하고 있다. 본 연구에서 사용된 조건(노즐 간격 1.0 cm, 출구 속도 80 cm/s)에서 시뮬레이션에서 예측된 과농/희박 예혼합 화염($\alpha=0.6, 0.8$)의 이중화염(double flame)과 삼중화염(triple flame)구조가 실험 결과와 비교적 잘 일치하는 것을 알 수 있다. 삼중 화염($\alpha=0.8$)은 과농한 화염과 희박한 화염 사이에 이 두 화염의 상호 작용에 의해 나타나는 확산 화염이 존재하는데 여기서의 확산 화염은 과농 예혼합 화염에서 공급된 H₂와 CO가 희박 예혼합 화염에서 공급된 산소와 반응하는 화염이다.⁽¹⁰⁾ 이중

화염($\alpha=0.6$)은 분리된 희박 화염 지역과 과농 화염과 확산 화염이 함께 존재하는 지역을 갖는 2중구조로 되어 있다. 이러한 화염들의 구조는 OH 라디칼의 분포에서 확인될 수 있다. Fig. 7의 OH 라디칼의 시뮬레이션 분포는 $\alpha=0.8$ 조건에서는 삼중화염이, $\alpha=0.6$ 조건에서는 이중화염이 발생하는 것을 의미하고 있다. Fig. 8은 동일한 조건에서 실험된 OH 라디칼의 LIF 신호 분포를 보여주고 있다. 측정된 OH 라디칼의 LIF 신호 분포가 시뮬레이션과 경향이 같으며, 이로부터 시뮬레이션 결과가 타당하다는 것을 알 수 있었다.

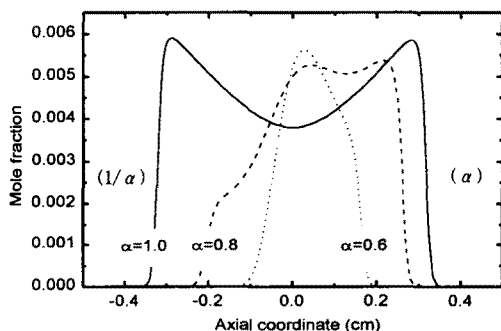


Fig. 7 Calculated OH concentrations for various α .

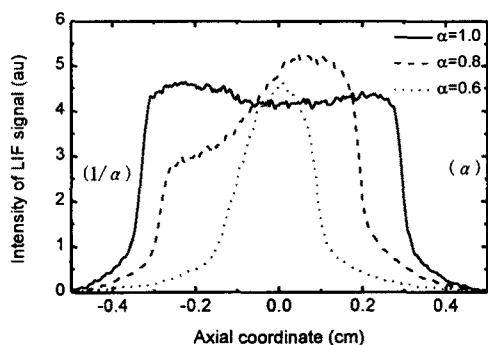


Fig. 8 OH LIF signals for various α .

대항류 화염의 특성상 연료/공기를 희

석시키면 화염영역이 정체점 쪽으로 좁아지며, 따라서 화염의 구조도 변하게 된다. Fig. 9는 N_2 로 희석하면 연소반응 속도의 감소로 화염지역이 정체면으로 이동하며 고온/반응지역이 감소하는 것을 보여준다. 특히 $\alpha=0.8$ 의 경우 질소 희석에 의한 반응지역의 축소로 삼중화염에서 이중화염 형태로 화염구조의 변화가 나타나고 있다.

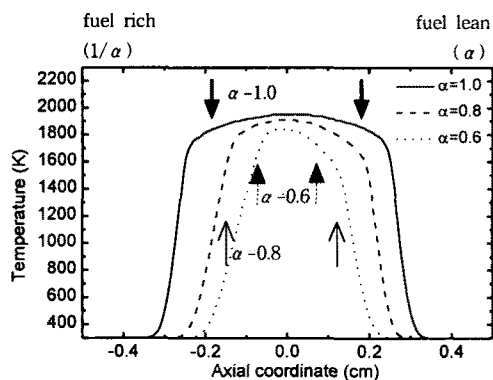


Fig. 9 Flame positions with 10 % N_2 dilution for various α , calculated (lines) and measured (arrows).

Fig. 10은 시뮬레이션된 OH 라디칼의 분포를 나타내며, 질소의 희석으로 반응 지역의 축소와 OH 라디칼 농도가 감소하는 것을 알 수 있다. 이와 같은 화염 구조의 변화는 대항류 화염의 NO 생성에 영향을 주게되어 NO 생성특성을 해석하는데 화염구조의 변화가 고려되어야 한다는 것을 의미한다. 질소 희석에 따른 반응지역의 변화는 PLIF를 이용한 실험에서도 확인되었다. Fig. 11은 질소 10%로 희석된 화염들의 OH 라디칼의 LIF 신호를 보여주며, 계산된 OH 라디칼의 분포와 같은 경향을 알 수 있었다. 그러나 실험 결과에서는 예혼합 화염($\alpha=1$)의 경우 중앙의 고온지역에서 OH의

농도가 시뮬레이션보다 더 높게 나타났으며, 과농/희박 예혼합 화염($\alpha=0.6, 0.8$)에서는 OH 라디칼의 분포가 약간 과농 지역으로 치우쳐 나타났다.

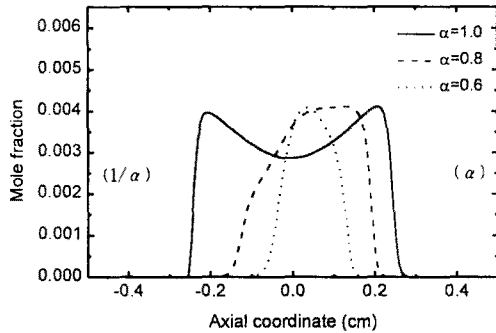


Fig. 10 Calculated OH concentrations for various α .

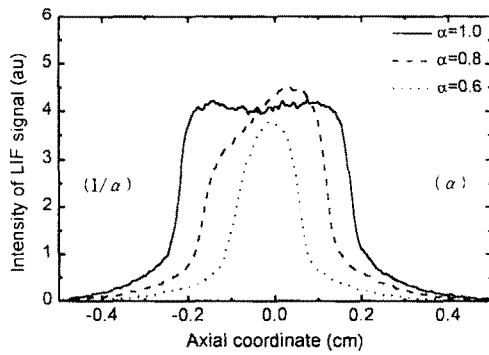


Fig. 11 OH LIF signals with 10 % N_2 dilution for various α .

4.2 화염에서의 NO 분포

Fig. 12는 화염에서의 NO 분포 시뮬레이션 결과⁽⁸⁾를 보여주고 있다. NO 분포가 예혼합 화염($\alpha=1$)에서는 중앙의 정체점에서 농도가 가장 높고 대칭으로 넓은 지역에 존재하는 반면, 과농/희박 예혼합 화염($\alpha=0.6, 0.8$)에서는 당량비의 차이와 화염의 구조적 특성으로 NO 분포가 비대칭이며 상대적으로 좁은 지역

에 나타나는 것을 알 수 있다.

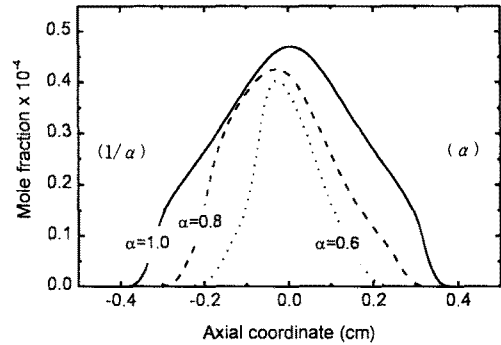


Fig. 12 Calculated NO concentration for various α .

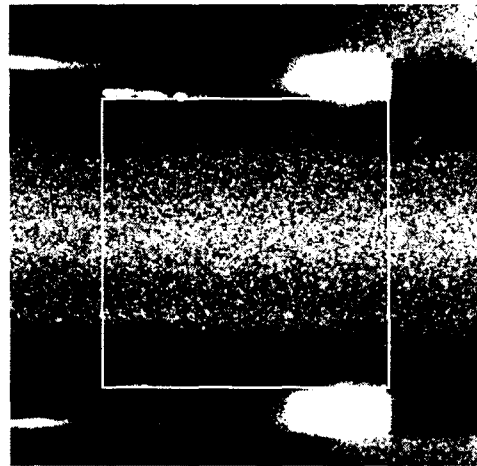


Fig. 13 NO LIF image of a CH_4/Air partially premixed flame ($\alpha=0.8$).

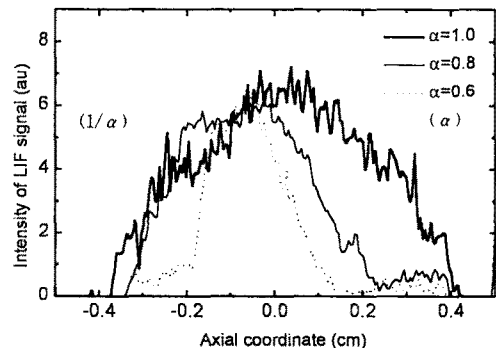


Fig. 14 NO LIF signals for various α .

Fig. 13은 화염 내에서의 분포 특성을 실험적으로 확인하기 위하여 측정된 NO의 PLIF 이미지의 예로, 희석이 없는 과농/희박 예혼합 화염($\alpha=0.8$)의 NO LIF 신호를 보여준다. 이때 얻어진 이미지는 화염의 자발광 신호가 함께 나타났으며, 별도로 얻어진 이미지로 화염의 자발광 신호를 제거하는 영상처리를 수행한 후 NO의 LIF 신호를 분석하였다.

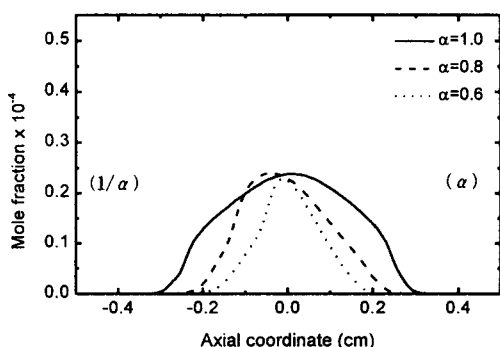


Fig. 15 Calculated NO concentrations with 10 % N₂ dilution for various α .

Fig. 14는 예혼합 화염($\alpha=1$), 과농/희박 예혼합 화염($\alpha=0.6, 0.8$)의 NO LIF 측정 결과로, Fig. 12의 시뮬레이션 결과와 경향이 일치하는 것을 알 수 있다. 따라서 LIF 실험결과는 다음의 대항류 화염 NO 생성 메카니즘에 대한 해석⁽⁸⁾을 지지하고 있다. (1) 예혼합 화염($\alpha=1$)의 경우 Fenimore 및 reburn 메카니즘의 기여도가 비교적 적으며 정체면을 중심으로 고온지역이 넓어 thermal 메카니즘의 역할이 매우 크다. (2) 비대칭 화염인 $\alpha=0.6$ 의 경우 NO 생성/소멸율이 과농 예혼합 지역에서만 높고 희박 예혼합 지역에서는 매우 낮으며, 특히 희박 예혼합 지역에서는 reburn의 역할이 거의 없다. (3) α 가 0.8로 증가하면 희박 예혼합 지역에서도 Fenimore(N₂O 메카니즘 등을

포함) 메카니즘에 의한 NO 생성이 중요하게 되며, $\alpha=0.6$ 또는 0.8의 이중, 삼중 화염에서는 과농/희박 예혼합 화염의 위치에 따라 thermal, Fenimore 및 reburn 메카니즘의 상대적인 기여도가 다를 수 있다.

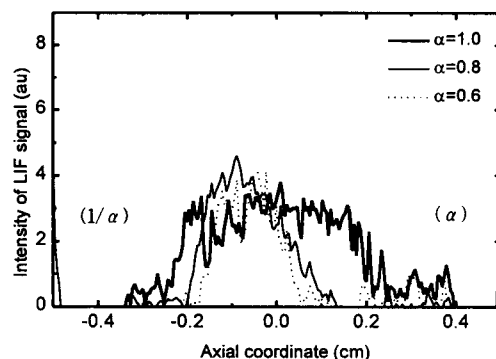


Fig. 16 NO LIF signals with 10 % N₂ dilution for various α .

Fig. 15는 질소로 희석된 화염에서 예측된 NO의 분포를, Fig. 16은 동일한 조건에서 측정된 NO의 LIF 신호를 보여주고 있다. 질소 희석에 따라 예혼합화염($\alpha=1$)의 경우 NO 분포 지역이 줄어들고 정체면 지역에서 NO 농도가 크게 줄어드는 것을 알 수 있다. 반면에 $\alpha=0.6$ 인 과농/희박 예혼합 화염의 경우에는 NO 농도는 줄어들지만 NO 분포 지역은 크게 변하지 않는 것을 알 수 있다. 이와 같은 결과는 앞에서 보여준 화염의 직접 사진과 OH LIF 이미지에서 확인된 화염 구조의 변화 효과임을 알 수 있었다. $\alpha=1$ 인 예혼합화염은 질소 희석에 의하여 화염/고온 지역이 크게 줄어드는 반면, $\alpha=0.6$ 인 과농/희박 예혼합 화염은 화염/고온 지역이 크게 변하지 않으므로 NO 분포 지역의 변화가 거의 없게 된다고 생각된다. 따라서 대항류 부분예혼합 화염은 예혼합정도에 따라 NO 생성 특성

에 미치는 희석효과가 다를 수 있음을 확인할 수 있었다.

5. 요약

대항류 메탄/공기 예혼합 화염과 과농/희박 예혼합 화염에서 PLIF 기법을 이용하여 OH 및 NO 분포를 측정하고 이를 수치해석 결과와 비교하였다. OH 및 NO LIF 신호는 계산된 농도 분포와 대체적으로 잘 일치하였으며, 대항류 예혼합 화염에서는 화염의 구조가 NO 생성 특성에 많은 영향을 미치는 것을 알 수 있었다.

예혼합 화염($\alpha=1$)에서는 중앙의 정체점에서 NO 농도가 가장 높고 대칭으로 넓은 지역에 존재하는 반면, 과농/희박 예혼합 화염($\alpha=0.6, 0.8$)에서는 당량비의 차이와 화염의 구조적 특성으로 NO 분포가 비대칭이며 상대적으로 좁은 지역에 나타났다. 희석에 따른 부분예혼합 화염 구조의 변화가 NO 생성에 영향을 주었다. 예혼합화염($\alpha=1$)의 경우 질소 희석으로 NO 분포 지역이 줄어들고 정체면 지역에서 NO 농도가 크게 줄어들었으며, $\alpha=0.6$ 인 과농/희박 예혼합 화염의 경우에는 NO 농도는 줄어들지만 NO 분포 지역은 크게 변하지 않았다.

예혼합 화염($\alpha=1$)의 경우 중앙의 고온지역에서 OH LIF 신호가 시뮬레이션보다 높게 나타났으며, 과농/희박 예혼합 화염($\alpha=0.6, 0.8$)에서는 OH 라디칼의 분포가 과농지역으로 치우치는 것이 관찰되었다. NO PLIF 신호측정시 광학 필터만으로는 화염의 자발광을 제거할 수 없었으며 이에 대한 대책이 요구된다.

후 기

본 연구는 1996년도 한국학술진흥재단의 공모과제(KRF-96-001-E0622) 연구비에 의하여 수행되었습니다.

참고문헌

- (1) Smyth, K. C., "NO Production and Destruction in a Methane/Air Diffusion Flame", *Combustion Science and Technology*, Vol. 115, pp. 151-176, 1996
- (2) Blevins, L. G. and Gore, J., "Computed Structure of Low Strain Rate Partially Premixed CH₄/Air Counterflow Flames: Implications for NO Formation", *Combustion and Flame*, Vol. 116, pp. 546-566, 1999
- (3) Li, S. C. and Williams, F. A., "NO_x Formation in Two-Stage Methane-Air Flames", *Combustion and Flame*, Vol. 118 pp. 399-414, 1999
- (4) Drake, M. D. and Blint, R. J., "Calculation of NO_x Formation Pathways in Propagating Laminar, High Pressure Premixed CH₄/Air Flames", *Combustion Science and Technology*, Vol. 75, pp. 261-285, 1991
- (5) Smith, G. P., et al., "GRI-Mech 2.11", *Annual Report SRI International*, 1996
- (6) Feese, J. J. and Turns, S. R., "Nitric Oxide Emission from Laminar Diffusion Flames: Effects of Air-Side versus Fuel-Side Diluent Addition", *Combustion and Flame*, Vol 113, pp. 66-78, 1998
- (7) 이원남, 차민석, 송영훈, 정석호, "LIF를 이용한 메탄 화염의 OH, CH 분포 및 NO생성 메커니즘에 관한

실험적 연구", 대한기계학회

열공학부문 추계학술대회, 1999

(8) 이원남, 이용재, "EGR 및 예혼합
정도가 메탄/공기 화염의 NO 생성에
미치는 영향," 한국연소학회지, 4, 2,
63-74, 1999

(9) 김기현, "Counterflow Burner Design
and Analysis of Counterflow Diffusion
Flames Considering Flow Characteristics,"
단국대학교 대학원 석사논문, 1997

(10) 이승동, 정석호, "희박-과농 메탄
화염의 상호작용에 관한 수치 해석적
연구", 대한기계학회 논문집(B),
제 20권 제 1호, pp. 377-383, 1996